

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA
SISTEMAS DE PROCESSOS QUÍMICOS E INFORMÁTICA

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL
SEÇÃO CIRCULANTE

**EFETIVIDADE DAS BENTONITAS NA RETENÇÃO
DE CÉSIO EM PRODUTOS DE REJEITOS
CIMENTADOS**

Clédola Cássia Oliveira de Tello

Elias Basile Tambourgi

Tese de Doutorado apresentada à Faculdade de Engenharia Química
como parte dos requisitos exigidos para a obtenção do título de Doutor
em Engenharia Química.

Campinas - São Paulo
Janeiro de 2001

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL

201.577.22

UNICAMP
T239e
Ex.
OMBO BC/ 44467
PROC. 16-092/01
C ☐ D ☒
PREÇO R\$ 11,00
DATA 16/05/01
N.º CPD

CM00156293-0

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA - BAE - UNICAMP

T239e Tello, Clédola Cássia Oliveira de
Efetividade das bentonitas na retenção de cézio em
produtos de rejeitos cimentados / Clédola Cássia Oliveira
de Tello. --Campinas, SP: [s.n.], 2001.

Orientador: Elias Basile Tambourgi.
Tese (doutorado) - Universidade Estadual de
Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

1. Césio. 2. Resíduos. 3. Meio Ambiente. . I.
Tambourgi, Elias Basile II. Universidade Estadual de
Campinas. Faculdade de Engenharia Química. III. Título.

Tese de Doutorado defendida por Cássia Clédola Oliveira de Tello em 30 de janeiro de 2001 e aprovada pela banca constituída pelos seguintes Doutores



Prof Dr Elias Basile Tambourgi - FEQ - UNICAMP



Profa Dra Ana Maria Fratini Fietz- FEQ - UNICAMP



Prof Dr João Sinézio de C Campos- FEQ - UNICAMP



Profa Dra Ana P Brescancini Rabelo - PUC - MG



Dr Wilmar Barbosa Ferraz- CDTN -CNEN

Esta versão corresponde à final da Tese de Doutorado defendida por
Cássia Clédola Oliveira de Tello em 30 de janeiro de 2001

A handwritten signature in black ink, consisting of a stylized 'E' followed by a cursive flourish.

Prof Dr Elias Basile Tambourgi
orientador

A Rafael e Marina.
A meus tios Neide e Custódio.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Elias Basile Tambourgi pela orientação e confiança.

A MSc. Maria Augusta Silva do Prado pelas sugestões, revisão, envolvimento, colaboração e, principalmente, pela amizade e presença em todos os momentos.

A Maria Judite Afonso Haucz pela grande colaboração na execução dos ensaios e elaboração das planilhas, bem como pela sua amizade dedicada.

A Francisco Donizete Cândido pela colaboração na execução dos ensaios.

A Maria das Graças Pinho pelo profissionalismo, carinho e colaboração para que este trabalho fosse possível.

Ao Dr. Terry Sullivan do Brookhaven National Laboratory – BNL pela orientação no uso do programa de computador ALT.

Aos meus colegas do Serviço de Tecnologia de Rejeitos – CT3 do CDTN/CNEN.

A minha família, especialmente ao meu irmão Bosco e minha cunhada Bete e a meus tios Neide e Custódio, que me apoiaram nos momentos mais difíceis desta caminhada.

Especialmente a meus filhos Rafael e Marina pelo incentivo, carinho, paciência e colaboração.

A todos os amigos que sempre estiveram comigo.

RESUMO

A energia nuclear tem sido usada em diferentes áreas para o benefício e o desenvolvimento humano. Suas principais aplicações são nas áreas de geração elétrica, na medicina, na agricultura, na indústria e proteção do meio ambiente. Como em outras atividades, no uso da energia nuclear também são gerados resíduos. Estes resíduos são considerados rejeitos, quando possuem contaminantes em quantidades que podem ter impacto potencial negativo na saúde humana e no ambiente, devendo ser gerenciados adequadamente. Os rejeitos não devem ser liberados sem um tratamento prévio. Seu processamento consiste, geralmente, em uma redução de volume, seguida de solidificação e/ou acondicionamento.

Muitos materiais são considerados como matrizes para a incorporação destes rejeitos, com o objetivo de manter o material ativo em uma forma estável física e quimicamente. O cimento é um material largamente utilizado com este objetivo pela facilidade na sua obtenção, por existir uma larga experiência na sua utilização e pela possibilidade de ser processado à temperatura ambiente. Diversos materiais têm sido estudados visando melhorar as características de fixação dos radionuclídeos no produto cimentado.

O objetivo do estudo foi pesquisar, entre os materiais naturais existentes no país, aqueles que fossem efetivos na retenção de contaminantes no produto cimentado, sem prejudicar o processo e outras características do produto final. Selecionaram-se quatro tipos de bentonita para testes de avaliação de processo e produto. Prepararam-se diversas misturas contendo rejeito simulado, cimento e bentonita, em diferentes proporções. Avaliaram-se a viscosidade, o tempo de pega, a resistência à compressão e a lixiviação. Verificou-se também o estado monolítico e ausência de água livre no produto solidificado. O cério inativo foi o traçador escolhido para a lixiviação. A resistência à lixiviação é o principal parâmetro na análise do produto, pois indica a capacidade de retenção dos radionuclídeos pela matriz, quando o produto entra em contato com a água.

Os ensaios de lixiviação foram iniciados em 1985 e a troca do lixiviante tem sido feita anualmente ao longo dos últimos 14 anos. Através deste ensaio verificou-se que a bentonita foi realmente eficiente na retenção de cério.

Os resultados experimentais foram analisados através de um programa de computador desenvolvido no Brookhaven National Laboratory, para modelar resultados de ensaios lixiviação, baseado em quatro mecanismos de liberação. Obteve-se um bom ajuste dos dados para o modelo de partição, sendo que aqui também constatou-se que a bentonita teve um papel efetivo na retenção de cério no produto. Os resultados obtidos nesta análise podem ser usados nos estudos de avaliação de segurança de repositórios.

Palavras-chave:

rejeitos radioativos, cimentação, lixiviação, bentonitas, gerência de rejeitos.

ABSTRACT

The nuclear energy has been used for the human development in different areas, as in the medicine, in the agriculture, in the industry and in the environmental protection, besides the electricity generation. As in other activities, in the use of nuclear energy, residues are also generated. They are considered radioactive wastes when the contaminant content can bring a potential negative impact in the human health and in the environment. In this case they should be properly managed and should not be released without treatment. In general the waste processing consists in a volume reduction followed by solidification and/or conditioning.

A number of materials can be considered as immobilisation matrices for the wastes, with the objective of maintain the radioactive material physical and chemically stable. The cement is extensively used because it is easy to obtain, there is large experience in its use and the processing is done at room temperature. Many materials have been studied to improve the fixation characteristics of the radionuclides in the cemented product.

The aim of this study was to search, among Brazilian natural materials, those that could be effective in the contaminant retention without jeopardising the process and other characteristics of the waste product. Four types of bentonite were selected to the process and product evaluation tests. Many mixtures were prepared with simulated waste, cement and bentonite in different proportions. The viscosity, set time, compressive strength and leaching were evaluated. In addition it was verified if the products were monolithic and without free water. Inactive caesium was used as tracer. The leaching resistance is the most important parameter in the product evaluation, because it indicates the retention capacity of the matrix for radionuclides when the product is in contact with the water.

In 1985 leaching tests were begun and they have been continued till now and from their results it was proved that the bentonites were efficient in the caesium retention.

The leaching data were analysed by a BNL computer program that models four release mechanisms. A good fit was obtained for the partition mechanism. The results obtained in this study can be used in the repository safety assessment.

SUMÁRIO

RESUMO	vii
ABSTRACT	viii
LISTA DE FIGURAS	xi
LISTA DE TABELAS	xii
NOMENCLATURA	xiii
1. INTRODUÇÃO	1
2. REVISÃO DA LITERATURA	6
2.1 <i>Rejeitos Radioativos</i>	6
2.2 <i>Gerência de Rejeitos</i>	8
2.3 <i>Tratamento de Rejeitos Radioativos</i>	12
2.4 <i>Deposição</i>	14
2.4.1 <i>Produto de rejeito</i>	17
2.4.2 <i>Embalagem do produto de rejeito</i>	17
2.4.3 <i>Material tampão e de recheio</i>	18
2.4.4 <i>Sítio</i>	18
2.5 <i>Cimentação</i>	19
2.6 <i>Avaliação do Produto Cimentado</i>	22
2.6.1 <i>Características físicas, químicas e físico-químicas</i>	24
2.6.2 <i>Características mecânicas</i>	27
2.6.3 <i>Características radioquímicas</i>	29
2.7 <i>Bentonita</i>	29
2.8 <i>Lixiviação em Produtos Contendo Rejeitos Radioativos</i>	32
3. MATERIAIS E MÉTODOS	36
3.1 <i>Rejeito Simulado</i>	38
3.2 <i>Cimento</i>	38
3.3 <i>Bentonita</i>	39
3.4 <i>Confecção das Pastas e Corpos-de-Prova</i>	42
3.5 <i>Propriedades Avaliadas</i>	42
3.5.1 <i>Ensaio para a determinação da viscosidade</i>	42
3.5.2 <i>Ensaio para a determinação do tempo de pega</i>	43
3.5.3 <i>Ensaio para a determinação da resistência à compressão</i>	44
3.5.4 <i>Ensaio para a determinação da evolução da temperatura no produto</i>	45
3.5.5 <i>Ensaio para a determinação da lixiviação</i>	46
3.5.6 <i>Ensaio para a avaliação da capacidade de absorção de césio pelas bentonitas</i>	47
3.6 <i>Programa Computacional Utilizado para a Avaliação dos Resultados dos Ensaios de Lixiviação</i>	48
3.6.1 <i>Fundamento teórico</i>	48
3.6.2 <i>Estrutura do programa</i>	49
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES	52
4.1 <i>Ensaio Preliminares</i>	52
4.2 <i>Ensaio para a Determinação da Evolução da Temperatura no Produto</i>	55
4.3 <i>Ensaio para a Avaliação da Capacidade de Absorção das Bentonitas</i>	57
4.4 <i>Ensaio de Lixiviação com Traçador Inativo</i>	60
4.5 <i>Análise dos Resultados de Lixiviação Através do Programa ALT</i>	69
5. CONCLUSÕES	74
6. SUGESTÕES	77
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	78

ANEXOS	84
ANEXO A - TEORIA MATEMÁTICA DO PROGRAMA COMPUTACIONAL ALT	
ANEXO B – GLOSSÁRIO USADO NA TEORIA DO PROGRAMA COMPUTACIONAL ALT	
ANEXO C – PROTOCOLOS DOS ENSAIOS DE LIXIVIAÇÃO	
ANEXO D – RESULTADOS DO PROCESSAMENTO DOS DADOS DE LIXIVIAÇÃO PELO PROGRAMA ALT.	

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 2.1	Etapas da gerência de rejeitos.....	10
FIGURA 2.2	Diagrama mostrando as barreiras de um repositório de rejeitos	15
FIGURA 2.3	Repositório de El Cabril	16
FIGURA 2.4	Diagrama ternário para as principais composições dos cimentos	21
FIGURA 2.5	Estrutura cristalina na montmorilonita	30
FIGURA 2.6	Inchamento das bentonitas	31
FIGURA 3.1	Difratogramas das bentonitas G, F, B e N.....	41
FIGURA 3.2	a) Ensaio para a determinação de viscosidade (viscosímetro Brookfield) b) Esquema do viscosímetro Brookfield	43
FIGURA 3.3	a) Ensaio para a determinação do tempo de pega (Aparelho de Vicat).... b) Esquema do aparelho de Vicat automático.....	44
FIGURA 3.4	Ensaio para a determinação da resistência à compressão (a) Corpo-de-prova após 28 dias de cura seca, sem molde (b) Corpo-de-prova sendo rompido.....	45
FIGURA 3.5	Esquema da montagem para a determinação da evolução da temperatura no produto cimentado	46
FIGURA 3.6	Ensaio de lixiviação com traçador inativo.....	47
FIGURE 3.7	Fluxograma das funções principais do programa de computador para o .. ensaio de lixiviação acelerado (Programa ALT).....	50
FIGURA 4.1	Viscosidade de diversas pastas de cimento, bentonita B e rejeito	53
FIGURA 4.2	Perfil da temperatura durante a pega do produto cimentado com..... bentonita.....	56
FIGURA 4.3	Perfil da temperatura para produtos cimentados - Ensaio no FZK	56
FIGURA 4.4	Quantidade de cério absorvido pela bentonita e pelo produto de cimento/ rejeito / bentonita (G e B) em relação ao cério adicionado	59
FIGURA 4.5	Comparação entre a quantidade de cério absorvido pela bentonita e pelo produto de cimento / rejeito / bentonita (G e B).....	59
FIGURA 4.6	Protocolo para acompanhamento do ensaio de lixiviação.....	61
FIGURA 4.7	Quantidade relativa de cério liberado em função do tempo (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita G ou F) 62	62
FIGURA 4.8	Quantidade relativa de cério liberado em função do tempo (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita N ou B) 62	62
FIGURA 4.9	Taxa de lixiviação de cério inativo "versus" tempo (Ensaio de lixiviação .. ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita G ou F)	63
FIGURA 4.10	Taxa de lixiviação de cério inativo "versus" tempo (Ensaio de lixiviação .. ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita N ou B)	63
FIGURA 4.11	Taxa de lixiviação de cério inativo "versus" a quantidade de bentonita adicionada (Ensaio de lixiviação ISO; 1 ano de experimentos; produtos .. de cimento, rejeito simulado e bentonita	64
FIGURA 4.12	Fração lixiviada incremental de cério para as misturas com bentonita G ..68	68
FIGURA 4.13	Fração lixiviada acumulada de cério para as misturas com bentonita G ..68	68
FIGURA 4.14	Fração lixiviada acumulada em função do tempo e a curva modelada para o modelo de difusão para a amostra G12-A.....	70
FIGURA 4.15	Fração lixiviada acumulada em função do tempo e a curva modelada para o modelo de partição para a amostra G12-A	71
FIGURA 4.16	Fração lixiviada incremental em função do tempo e a curva modelada	71

LISTA DE TABELAS

TABELA 2.1	Principais radioisótopos presentes em rejeitos radioativos	8
TABELA 2.2	Comparação entre as principais opções para a produção de energia	11
TABELA 2.3	Critérios gerais para a seleção da tecnologia para as etapas da	
	Gerência de rejeitos radioativos.....	13
TABELA 2.4	Principais características dos principais processos de solidificação de ...	
	rejeitos de baixo e médio nível de atividade	14
TABELA 2.5	Barreiras de engenharia e suas funções	16
TABELA 2.6	Composição típica de um cimento Portland comum (óxidos)	21
TABELA 2.7	Compatibilidade entre o rejeito e a matriz de cimento	26
TABELA 2.8	Compatibilidade entre o produto cimentado e o recipiente	27
TABELA 2.9	Alguns parâmetros e valores para produtos cimentados	28
TABELA 2.10	Características avaliadas na qualificação de produtos cimentados	28
TABELA 2.11	Características de alguns métodos de ensaio de lixiviação.....	33
TABELA 2.12	Alguns resultados de ensaios de lixiviação para produtos cimentados	34
TABELA 2.13	Alguns modelos de mecanismos de transporte.....	35
TABELA 3.1	Composição da solução simulando rejeito de médio nível de radiação	38
TABELA 3.2	Características da bentonita G	39
TABELA 3.3	Características da bentonita B	40
TABELA 3.4	Características das bentonitas utilizadas nos ensaios	40
TABELA 4.1	Resistência à compressão de corpos-de-prova de cimento	52
TABELA 4.2	Resultados dos ensaios de tempo de pega em pastas de cimento,	
	bentonita e rejeito simulado, contendo 10% de sais incorporados	54
TABELA 4.3	Resistência à compressão das misturas selecionadas para os	
	ensaos de lixiviação	55
TABELA 4.4	Quantidade de cézio absorvido pela bentonita pura e pelo produto	
	bentonita e cimento em contato com água deionizada	58
TABELA 4.5	Taxas de lixiviação calculadas segundo o método ISO para os ensaios ..	
	de lixiviação a temperatura ambiente (1 ano de experimentos)	634
TABELA 4.6	Quantidade relativa de cézio inativo liberado após um ano de lixiviação ..	
	em água deionizada	66
TABELA 4.7	Comparação entre as frações lixiviadas acumuladas de ¹³⁴ Cs de	
	rejeitos de descontaminação cimentados após 80 dias de ensaio	669
TABELA 4.8	Taxas de lixiviação calculadas segundo o método ISO para os ensaios ..	
	de lixiviação à temperatura ambiente após 10 anos de experimentos	69
TABELA 4.9	Coefficientes de difusão (De) das amostras do ensaio de lixiviação	
	obtidos usando o programa de computador ALT	732
TABELA 4.10	Coefficientes de difusão (De) de produtos cimentados encontrados em ...	
	experimentos realizados no FZK, Alemanha.....	73

NOMENCLATURA

[A_0] – Concentração do constituinte inicialmente presente no corpo-de-prova ou amostra sólida (fração em massa).

A_0 – Massa do constituinte no corpo-de-prova (amostra sólida) no início do ensaio de lixiviação.

ABCP – Associação Brasileira de Cimento Portland.

ABNT – Associação Brasileira de Normas Técnicas.

Aditivo natural – Material de origem mineral, beneficiado fisicamente, usualmente argilas, como bentonita, vermiculita e serpentinita, usado com o objetivo de reter os contaminantes na matriz de cimento e melhorar as características do produto final.

Aditivo Químico – Composto de reagentes químicos usado em pequenas quantidades, pré-determinadas, durante a confecção da pasta, tendo como objetivo melhorar o processo de cimentação e a qualidade do produto final.

AIEA – Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA – International Atomic Energy Agency). Instituição intergovernamental da Organização das Nações Unidas (ONU), responsável por promover e assegurar o uso pacífico da energia nuclear em todos os países membros.

ALT – Sigla para Accelerated Leach Test (Ensaio de lixiviação acelerado); ensaio normalizado pela ASTM.

a_n – Massa do constituinte lixiviado durante determinado intervalo de lixiviação.

Argila- Material natural mineral tendo propriedades plásticas e composto de partículas muito finas. Usualmente considera-se a fração de argila de um solo a porção que consiste de partículas mais finas do que $2\mu\text{m}$. As argilas minerais são, essencialmente, silicatos de alumínio hidratados ou, ocasionalmente, silicatos de magnésio hidratados, com cátions sódio, cálcio, potássio e magnésio.

ASTM – American Society for Testing and Materials.

Bentonita – Argila composta principalmente de minerais do grupo da montmorilonita, caracterizada pela alta capacidade de sorção e grande mudança de volume pelo umedecimento e secagem.

CDTN – Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear.

CFL – Cumulative Fraction Leached; a soma da fração lixiviada durante todos os intervalos de amostragem.

Cimento Portland (CP)– É um produto químico composto, em sua maior parte, de silicatos e aluminatos de cálcio. Depende para sua fabricação, principalmente, dos produtos minerais calcário, argila e gesso.

Cimento Portland de Alta Resistência Inicial – Aglomerante hidráulico que atende às exigências de alta resistência inicial, obtido pela moagem de clínquer Portland, constituído em sua maior parte de silicatos de cálcio hidráulicos, ao qual se adiciona, durante a operação, a quantidade necessária de uma ou mais formas de sulfato de cálcio. Usualmente conhecido como CP ARI.

Clínquer Portland – Produto constituído em sua maior parte de silicatos de cálcio com propriedades hidráulicas.

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear.

Concreto – Mistura, em proporções prefixadas, de um aglutinante (cimento) com água e um agregado constituído de areia e pedra, que forme uma massa compacta e de consistência mais ou menos plástica, e que endureça com o tempo.

Condicionamento – Operação que tem como objetivo alterar a forma do rejeito para outra que seja apropriada para o transporte e/ou armazenamento e/ou deposição. As operações podem incluir conversão do rejeito para outra forma, colocação dos rejeitos em embalagens e fornecimento de embalagem adicional.

CP – Cimento Portland.

CP ARI – Cimento Portland de alta resistência inicial.

D_e – Coeficiente de difusão efetivo, o coeficiente de difusão que resulta da difusão modificada por outros processos (p. ex. adsorção) ou restrição física (p. ex. tortuosidade).

Deposição ou Disposição – Colocação de rejeitos radioativos em local aprovado pelas Autoridades Competentes, sem intenção de removê-los.

ECI – Elemento Combustível Irradiado; elemento combustível após sua utilização no reator de potência.

Ensaio – Operação técnica que consiste na determinação de uma ou mais características, ou desempenho de um produto, material, equipamento, fenômeno físico, processo ou serviço, em conformidade com o procedimento especificado.

FZK – Forschungszentrum Karlsruhe, antes KFK (Kernforschungszentrum Karlsruhe); centro de pesquisa da Alemanha.

Gerência de Rejeitos Radioativos (GRR) – Conjunto de atividades administrativas e técnicas relacionadas com coleta, segregação, manuseio, tratamento,

condicionamento, transporte, armazenamento, controle e deposição de rejeitos radioativos.

IAEA – International Atomic Energy Agency, o mesmo que AIEA.

IFL – Incremental Fraction Leached; a fração lixiviada da espécie de interesse durante um único intervalo de amostragem.

ISO – International Organization for Standardization.

Lixiviação — Extração de uma substância solúvel de um sólido por um solvente com o qual o sólido entra em contato.

NORM – Natural Occurring Radioactive Material; material radioativo de ocorrência natural.

Pasta — Mistura recém-preparada, de cimento e rejeito simulado ou real, podendo conter, se necessário, aditivos naturais e/ou químicos e água.

Produto de Rejeito Cimentado — Produto sólido obtido da cimentação de rejeitos, na forma final para transporte e armazenamento.

Produto Final ou Produto de Rejeito — Produto sólido obtido da solidificação de rejeitos, na forma final para transporte e armazenamento.

Produto Solidificado — O mesmo que Produto Final.

Programa ALT – Programa computacional desenvolvido para o estudo dos resultados do ensaio de lixiviação acelerado (ALT).

Recheio — Material usado para preencher as porções escavadas de um repositório ou os espaços vazios depois que o rejeito foi depositado no repositório.

Rejeito Radioativo (RR)— Qualquer material resultante de atividades humanas, que contenha radionuclídeos em quantidades superiores aos limites de isenção especificados na norma CNEN-NE-6.02 - Licenciamento de Instalações radiativas e para o qual a reutilização é imprópria ou não prevista.

Rejeito Simulado — Solução preparada em laboratório contendo os componentes encontrados em soluções de rejeito real.

Relação a/c ou a/c — Relação em peso entre as quantidades de água e cimento presentes na mistura.

Relação r/c ou r/c — Relação em peso entre as quantidades de rejeito e cimento presentes na mistura.

Repositório – Depósito destinado a receber, em observância aos critérios estabelecidos pela CNEN, os rejeitos radioativos provenientes de

armazenamentos iniciais, depósitos intermediários e depósitos provisórios. O mesmo que depósito final.

S – Área superficial do corpo-de-prova ou amostra sólida.

Segregação – Separação dos rejeitos, de acordo com suas características físicas, químicas, biológicas e radiológicas, de modo a facilitar a gerência.

Solidificação – Transformação do rejeito radioativo líquido ou de lamas radioativas para uma forma sólida, de modo a minimizar o potencial de migração ou dispersão de radionuclídeos pelos processos naturais, durante o armazenamento, transporte e deposição.

t – tempo.

TDL – Taxa de Lixiviação.

Tempo de Pega – Tempo necessário para que a pasta de cimento passe do estado pastoso ao estado sólido.

Tratamento – Qualquer operação visando modificar as características do rejeito radioativo, como por exemplo: redução de volume, mudança de composição, remoção de radionuclídeos e outros.

V – Volume da amostra solidificada ou corpo-de-prova.

ρ – densidade .

1. INTRODUÇÃO

A energia nuclear tem sido usada em diferentes áreas para o benefício e o desenvolvimento humano, tendo suas principais aplicações, além da geração elétrica, nas áreas médica, industrial, na agricultura e na proteção ao meio ambiente.

A energia elétrica é fator essencial para assegurar o crescimento econômico de um país e a qualidade de vida de sua população. A geração nucleoeleétrica é uma das opções menos poluentes, permitindo a obtenção de muita energia em um espaço físico relativamente pequeno e a instalação de usinas perto dos centros consumidores reduz o custo da distribuição da energia. Outras fontes de energia, como a solar ou a eólica, são de exploração cara, capacidade limitada e ainda sem utilização em escala industrial. Os recursos hidráulicos também apresentam limitações, além de provocar grandes impactos ambientais.

Atualmente na área médica o radiodiagnóstico e a radioterapia são técnicas amplamente utilizadas, através por exemplo dos radiofármacos. A esterilização de sangue e tecidos para transplantes por irradiação tem como objetivo prevenir possíveis rejeições. A irradiação é usada também para esterilizar instrumentos cirúrgicos e produtos médico-farmacêuticos. Na agricultura as principais aplicações da energia nuclear visam garantir maior produtividade, alimentos com melhor qualidade nutricional e maior resistência a pragas e doenças. A gamagrafia e os medidores de nível e espessura são exemplos do uso da energia nuclear na indústria.

No Brasil a energia nuclear é usada em todas as áreas citadas, principalmente na medicina, indústria e aplicações de radioisótopos para a preservação do meio ambiente. Atualmente existem para a geração de energia elétrica duas centrais nucleares, as Usinas de Angra 1 e 2, localizadas em Itaorna, RJ, com capacidade de 657 e 1309 MW de potência, respectivamente. A Usina Almirante Álvaro Alberto (Angra 1) entrou em operação comercial em 1985. Desde então já produziu mais de 30 milhões de MWh, energia suficiente para abastecer uma cidade de aproximadamente 1.200.000 habitantes durante este período. Os

testes operacionais de Angra 2 já foram realizados, iniciando sua operação comercial em 2001.

Como em outras atividades humanas, no uso da energia nuclear também são gerados resíduos sólidos, líquidos e gasosos. Muitos destes são considerados rejeitos, pois possuem contaminantes em quantidades que podem ter impacto potencial negativo na saúde humana e no ambiente e por isto devem ser bem gerenciados, não devendo ser liberados sem um tratamento prévio.

A Gerência de Rejeitos Radioativos (GRR) abrange as operações que começam na sua geração e terminam com a sua disposição em repositório. Estas operações têm como objetivo principal gerenciar os rejeitos de maneira segura de modo a proteger o homem e a natureza dos impactos negativos.

O processamento do rejeito radioativo consiste, geralmente, em uma redução de volume, seguida de solidificação e/ou acondicionamento. Muitos materiais e combinações de materiais estão sendo considerados como matrizes para a incorporação destes rejeitos, com o objetivo de manter o material ativo em uma forma estável física e quimicamente. Dentre estes materiais, incluem-se o cimento, o vidro, a cerâmica, o betume e os polímeros. A escolha da matriz vai depender de diversos fatores, como do tipo e da forma do rejeito, da atividade e dos radionuclídeos presentes, dos requisitos do repositório, além de fatores econômicos, de engenharia e de segurança.

A cimentação de rejeitos radioativos é um dos processos de solidificação e pode ser feita em sistemas fixos ou móveis, em batelada ou continuamente. O cimento é um material largamente utilizado na incorporação de rejeitos líquidos de baixa e média atividade, pela facilidade na sua obtenção, por existir uma larga experiência na sua utilização e pela possibilidade de ser processado à temperatura ambiente. Diversos materiais têm sido estudados visando melhorar as características de fixação dos radionuclídeos no produto cimentado. Dentre esses materiais está a bentonita.

A bentonita é uma argila composta principalmente de minerais do grupo da montmorilonita, caracterizada pela alta capacidade de absorção e grande

mudança de volume nos processos de umedecimento e secagem, tendo mostrado eficácia na retenção dos contaminantes no produto.

O objetivo da pesquisa foi selecionar, entre os materiais naturais existentes no país, aqueles que fossem efetivos na retenção de contaminantes no produto cimentado, sem prejudicar o processo e outras características do produto final. A partir de ensaios preliminares selecionaram-se quatro tipos de bentonita, comercialmente disponíveis, para testes mais específicos de avaliação de processo e produto. A avaliação do produto solidificado é feita através de vários ensaios como por exemplo, o de resistência à compressão, à corrosão e à lixiviação.

Prepararam-se diversas misturas contendo rejeito simulado, cimento e bentonita, tendo sido realizadas medidas de tempo de pega, de viscosidade, de evolução da temperatura, de resistência à compressão e de lixiviação. Os ensaios foram realizados em pastas e corpos-de-prova, variando-se a relação água/cimento e a proporção de bentonita nas misturas. Verificou-se também o estado monolítico e ausência de água livre no produto solidificado. Escolheu-se o cério inativo para traçador, por ser o isótopo ^{137}Cs considerado o produto de fissão mais problemático no processo de cimentação, devido à alta solubilidade de seus compostos, sua meia-vida e por não formar nenhum composto menos solúvel com os componentes do cimento.

A resistência à lixiviação é o principal parâmetro na análise do produto, pois indica a capacidade de retenção dos radionuclídeos pela matriz, quando o produto entra em contato com a água. A lixiviação é um fenômeno complexo governado por diferentes mecanismos e do qual se sabe muito pouco. Através dos ensaios de lixiviação são medidas as quantidades de radionuclídeos liberados, quando amostras do produto (simulado ou real) são colocadas em contato com soluções lixiviantes. Existem vários métodos propostos para estes ensaios e eles são utilizados de acordo com a necessidade e o objetivo de cada pesquisa.

Os ensaios de lixiviação foram iniciados em 1985 e a troca do lixivante tem sido feita anualmente ao longo dos últimos 14 anos. Através deste ensaio

verificou-se que a bentonita foi realmente eficiente na retenção de césio em todos os casos.

No Brookhaven National Laboratory, USA, foi desenvolvido um programa computacional para modelar resultados de ensaios de lixiviação de curta duração, com opções de extrapolação no tempo e na dimensão das amostras. Diante do grande número de dados de lixiviação disponíveis nesta pesquisa, decidiu-se fazer a sua análise através deste programa computacional e verificar sua validade para modelar ensaios com maior duração. Calculou-se o coeficiente de difusão, verificando-se o ajuste entre os dados experimentais e os modelos do programa. O modelo de partição mostrou-se bastante adequado para descrever o mecanismo de liberação do césio no período e nas condições do ensaio realizado.

Este tipo de avaliação poderá fornecer dados de extrapolação para uso em avaliação de segurança de repositórios. Em continuação pretende-se fazer um estudo para relacionar outras propriedades do produto de rejeito como, por exemplo, a resistência à compressão, com a liberação de césio.

As pesquisas do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN/CNEN na área de cimentação foram muito importantes durante o tratamento dos rejeitos gerados pelo acidente radiológico com a fonte de ^{137}Cs ocorrido em Goiânia, em 1987. As principais razões para isto foram o conhecimento dos parâmetros do processo de cimentação, a experiência com o radionuclídeo em questão, a utilização de materiais nacionais comercializados em todo o Brasil e, principalmente, a disponibilidade de resultados confiáveis dentro das condições existentes naquela ocasião, comprovados atualmente por este trabalho.

Os dados destas pesquisas têm sido utilizados também em trabalhos realizados pelo CDTN/CNEN para empresas estatais e particulares ou, em cooperação com a Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), para a América Latina. Dentre eles estão a otimização do sistema de solidificação dos rejeitos gerados na Usina Nuclear Almirante Álvaro Alberto (Angra 1); o acondicionamento de fontes de braquiterapia em diversos países e a definição do

processo e a determinação dos parâmetros para a cimentação de rejeitos orgânicos específicos gerados nos países da América Latina.

2. REVISÃO DA LITERATURA

O rejeito radioativo é gerado em atividades que envolvem o uso de material radioativo. Estas atividades incluem aplicações de técnicas em medicina, pesquisa, indústria e na produção de eletricidade a partir da energia nuclear.

2.1 *Rejeitos Radioativos*

Considerando-se que, com raras exceções, todos os materiais naturais e artificiais contêm radionuclídeos, incluindo os seres vivos, a asserção de que qualquer resíduo que possua elementos radioativos incorporados deva ser caracterizado como rejeito radioativo é imprópria. É necessário, portanto, estabelecer limites mínimos que qualifiquem um resíduo como rejeito radioativo. A determinação destes limites é fundamentada na avaliação das conseqüências que adviriam da liberação dos resíduos para a biosfera e leva em conta as propriedades dos mesmos, dos radioisótopos presentes, bem como as características do meio ambiente [1].

Considera-se rejeito radioativo (RR) qualquer material que contenha radionuclídeos em quantidades superiores aos limites de isenção especificados na norma da Comissão Nacional de Energia Nuclear CNEN-NE-6.02 [2] e para o qual a reutilização é imprópria ou não prevista [3].

Os rejeitos radioativos são gerados durante a operação dos reatores nucleares de potência, pelas instalações do ciclo do combustível (mineração, beneficiamento do minério, conversão, enriquecimento, fabricação de elementos combustíveis e reprocessamento) e por aqueles que utilizam radioisótopos na medicina, indústria, agricultura e pesquisa. Ressalta-se que os elementos combustíveis irradiados (ECI) dos reatores nucleares só serão considerados rejeito radioativo após uma definição, em âmbito nacional, da política de fechamento do ciclo do combustível nuclear. Alguns países proíbem o reprocessamento do ECI, outros o utilizam. No Brasil, ainda não foi tomada uma decisão clara de reprocessar, ou não, os elementos combustíveis irradiados. Os ECIs da Usina Nuclear de Angra 1 encontram-se armazenados numa piscina no prédio do reator .

Além disto, processos naturais como vulcões, erupções, jorros de água mineral, erosões e movimentos de areias podem também liberar frações radioativas, inicialmente em equilíbrio na natureza, e assim modificar o habitat humano. Por exemplo em Oklo, no Gabão, há 1,8 bilhões de anos atrás, um processo de fissão espontânea num depósito rico em urânio produziu o mesmo tipo de rejeito radioativo gerado em usinas de energia nuclear [4]. Este tipo de rejeito é classificado internacionalmente como NORM (Natural Occurring Radioactive Material), material radioativo de ocorrência natural.

Na Tabela 2.1 são apresentados sucintamente os principais radionuclídeos presentes nos rejeitos radioativos, com exceção dos rejeitos de reprocessamento e o elemento combustível irradiado (ECI).

Os rejeitos são normalmente coletados, processados e acondicionados, de modo a atender às exigências de normas de segurança para o transporte, armazenamento e deposição.

Eles podem ser classificados de diversas maneiras, levando-se em consideração suas características físico-químicas, o estágio de desenvolvimento da indústria nuclear e os requisitos de segurança. No entanto, as propriedades mais importantes para a classificação de rejeitos estão relacionadas à radioatividade, ou seja, ao tipo de desintegração dos radionuclídeos (alfa, beta, gama e/ou nêutrons), à radiotoxicidade (toxidez atribuída a um radionuclídeo) e à sua meia-vida.

Segundo a norma nacional CNEN-NE-6.05 [3], os rejeitos são classificados em categorias de acordo com o estado físico, natureza da radiação, concentração e taxa de exposição. A classificação dos rejeitos em categorias dependentes do tipo de radiação e da concentração de material radioativo ajuda no estabelecimento de uma linguagem comum entre os que operam sistemas de tratamento de rejeito.

TABELA 2.1
Principais radioisótopos presentes em rejeitos radioativos [1]

ORIGEM	RADIOISÓTOPO	MEIA-VIDA
REATOR	⁶⁰ Co	5,26 a
	¹³⁷ Cs	30,17 a
	⁵⁵ Fe	2,7 a
	³ H	12,323 a
	¹²⁹ I	1,6 x 10 ⁷ a
	⁸⁵ Kr	10,72 a
	⁹⁰ Sr	28,1 a
	¹³³ Xe	5,25 d
CICLO DO COMBUSTÍVEL (EXCETO REPROCESSAMENTO)	²²⁶ Ra	1,6 x 10 ³ a
	²²² Rn	3,825 d
	²³⁰ Th	7,7 x 10 ⁴ a
	²³⁵ U	7,038 x 10 ⁸ a
	²³⁸ U-	4,47 x 10 ⁴ a
INDÚSTRIA, MEDICINA E PESQUISA	²⁴¹ Am	433 a
	¹⁴ C	5,73 x 10 ³ a
	⁶⁰ Co	5,26 a
	¹³⁷ Cs	30,17 a
	⁶⁷ Ga	78,3 h
	³ H	12,323 a
	¹²⁵ I	59,7 d
	¹³¹ I	8,04 d
	¹⁹² Ir	74 d
	²¹⁰ Po	138,38 d
	²²⁶ Ra	1,6 x 10 ³ a
	²²⁸ Ra	5,75 a
	⁹⁰ Sr	28,1 a
	^{99m} Tc	6 h
	⁹⁹ Mo	66 h
	²³⁰ Th	7,7 x 10 ⁴ a
	²³² Th	1,4 x 10 ¹⁰ a
	²⁰¹ Tl	75,3 h

h = horas; d = dias; a = anos

2.2 Gerência de Rejeitos

O termo Gerência de Rejeitos Radioativos (GRR) abrange a seqüência de operações que envolvem os rejeitos começando na geração e finalizando com a sua deposição. Estas operações têm como objetivo principal gerenciar os rejeitos de maneira segura, de modo a proteger a saúde humana e o meio ambiente de seus impactos negativos. A magnitude e o tipo de impacto potencial resultante do

rejeito radioativo dependerá das suas propriedades físicas, químicas e biológicas, em particular daquelas relacionadas à radioatividade. A aplicação de tecnologias apropriadas em cada etapa, desde a geração até a deposição do rejeito, tem como objetivo minimizar ou prevenir este impacto potencial negativo [5].

A tecnologia aplicada à gerência de rejeitos é um tema que tem recebido considerável atenção dos Países Membros da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), em reconhecimento da importante ligação que existe entre a aceitação pública das aplicações nucleares e o gerenciamento seguro do rejeito radioativo. Esta ligação deve ser mantida para garantir a segurança radiológica para trabalhadores e público, para evitar acidentes e minimizar exposições a radionuclídeos associados ao rejeito radioativo.

Assim a principal tarefa de um sistema de gerenciamento de rejeitos é que todas as suas etapas sejam realizadas em conformidade com os requisitos nacionais e obrigações internacionais, levando em consideração os fatores econômicos e sócio-políticos envolvidos. Um fluxograma mostrando as etapas da gerência é apresentado na Figura 2.1.

A aplicação ótima de tecnologia relacionada à minimização, tratamento, condicionamento e armazenamento ou deposição dos rejeitos é necessária pelos seguintes fatores [5]:

- os rejeitos radioativos podem ser dispostos somente em instalações especialmente licenciadas para este fim;
- a deposição direta próxima à superfície de rejeito radioativo no solo (sem tratamento, imobilização ou embalagem apropriadas) não é aceitável;
- com o excessivo aumento dos custos na deposição de rejeitos, reduzir o seu volume oferece uma grande vantagem econômica e social;
- os critérios dos órgãos reguladores para cada etapa da gerência de rejeitos, como transporte, armazenamento e deposição, tornam-se mais restritivos a cada dia;
- com a crescente inquietação social relativa ao uso ótimo da terra e com o aumento da oposição do público à colocação de instalações de RR perto de suas localidades, o desenvolvimento de novas instalações é um processo caro, prolongado e difícil;

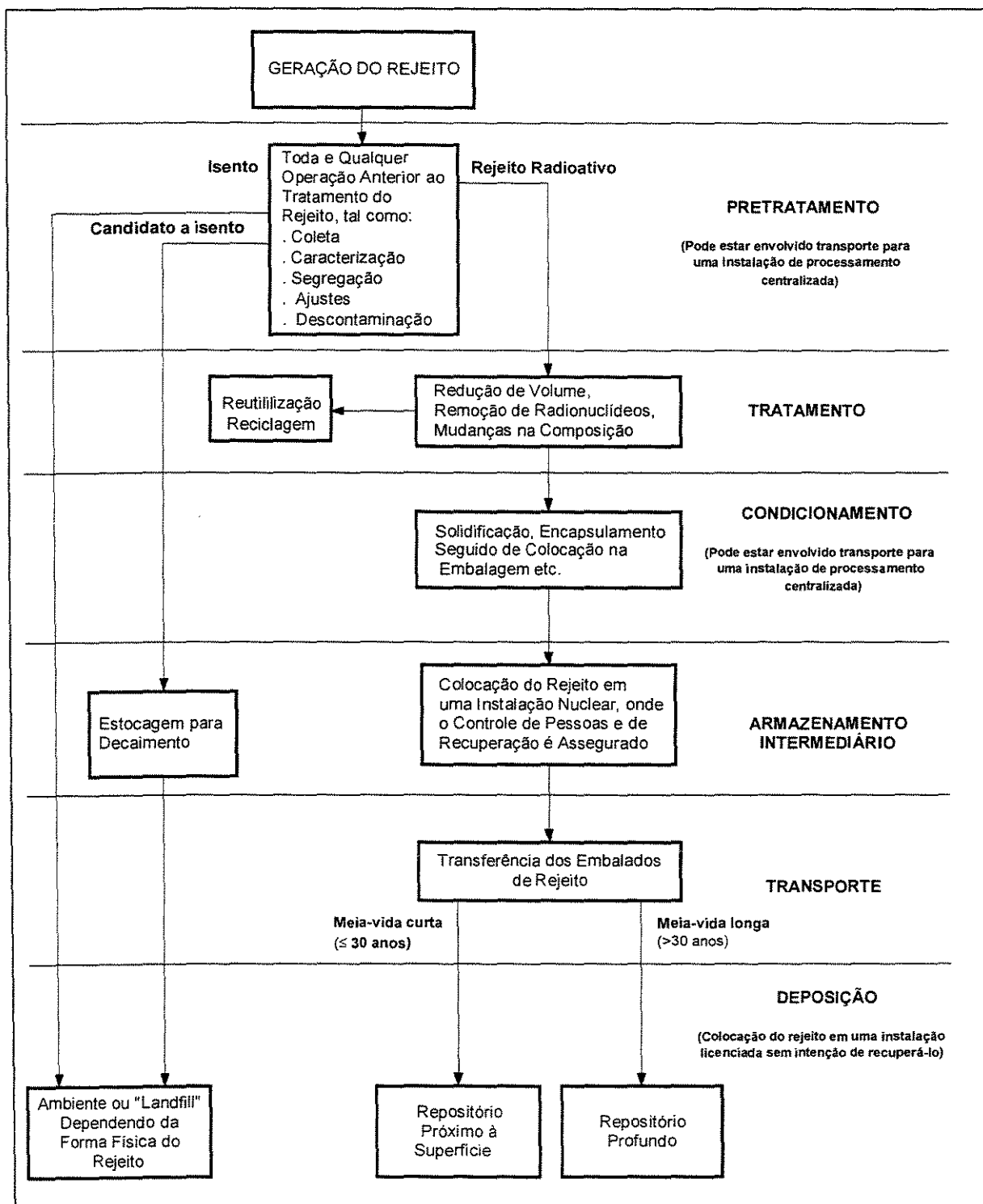


FIGURA 2.1
Etapas da gerência de rejeitos [5]

- avanços recentes em várias tecnologias adequadas para a gerência de RR têm tornado sua aplicação (custo/benefício) mais fácil de implementar;
- objetivos ótimos em termos de proteção segura à saúde humana e ao meio ambiente podem ser alcançados, se as tecnologias para a GRR são aplicadas com prudência.

Devido ao contínuo desenvolvimento da gerência de rejeitos, a indústria nuclear para usos pacíficos é talvez a única indústria, na qual haja realmente a preocupação em reduzir-se a quantidade de rejeito gerado e em tratá-lo adequadamente dentro de padrões nacionais e internacionais. Adicionalmente é mantido pela AIEA um cadastro de todo e qualquer incidente envolvendo a área nuclear. Assim tem-se registros da geração, tratamentos e locais de armazenamento temporário e definitivo de todos os rejeitos gerados na área nuclear. Verifica-se que, em se tratando de produção de energia, a opção nuclear além de necessitar de menor quantidade de combustível e menor área de construção, ainda gera menos rejeito por MW de energia produzido em comparação com outras fontes (Tabela 2.2).

TABELA 2.2
Comparação entre as principais opções para a produção de energia [4]
(Base: 1.000 MW)

ORIGEM	NUCLEAR	CARVÃO	PETRÓLEO
Combustível Gasto (t)	27	$2,6 \times 10^6$	2×10^6 (óleo)
Rejeitos Gerados (t)	27 (ANR) 310 (MNR) <u>460 (BNR)</u> 797 (Total)	6×10^6 gases $244 \times 10^3 \text{ SO}_x$ $222 \times 10^3 \text{ NO}_x$ 320×10^3 cinzas (com 400 de metais pesados)	

ANR = Alto nível de radiação; MNR = Médio nível de Radiação; BNR = Baixo nível de radiação

2.3 Tratamento de Rejeitos Radioativos

Existe uma vasta informação sobre tecnologias e projetos técnicos alternativos em todas as etapas da GRR, que requerem desenvolvimento e/ou validação. Nem todos estes processos estão igualmente desenvolvidos ou bem adaptados para todos os tipos de rejeito e situações. A seleção entre as tecnologias pode ser feita com base no estado organizacional de cada país, na experiência ou segundo um procedimento de otimização. Devido aos custos envolvidos, à complexidade potencial das considerações técnicas e ambientais, como também à necessidade de assegurar o desempenho adequado, o mecanismo de seleção vai requerer critérios claros. Alguns critérios serão mais gerais e aplicáveis a quase todos os sistemas de gerenciamento de rejeitos, outros serão aplicados a categorias específicas de rejeitos ou a etapas selecionadas da gerência [5].

Em razão da variedade de processos, técnicas e equipamentos disponíveis para as diferentes etapas de um sistema de GRR, para cada etapa uma tecnologia própria tem de ser selecionada. As diferentes tecnologias devem ser combinadas em um sistema integrado para otimizar a GRR. Em geral todos os fatores listados na Tabela 2.3 devem ser considerados durante a seleção de uma tecnologia para GRR [5].

O tratamento do rejeito consiste, geralmente, em uma redução de volume, seguida de solidificação e/ou acondicionamento. Muitos materiais e combinações de materiais estão sendo considerados como matrizes para a incorporação destes rejeitos, com o objetivo de manter o material ativo e outros contaminantes em uma forma estável física e quimicamente. Dentre estes materiais incluem-se o cimento, o betume, o vidro, a cerâmica e os polímeros.

A escolha da matriz vai depender de diversas variáveis, como tipo e forma do rejeito, atividade e radionuclídeos presentes, requisitos do repositório, além de aspectos econômicos, de engenharia e de segurança.

TABELA 2.3

Critérios gerais para a seleção da tecnologia para as etapas da gerência de rejeitos radioativos [5]

FATORES NÃO-TÉCNICOS	FATORES TÉCNICOS
<ul style="list-style-type: none">• Adequação do Sistema Nacional de GRR• Política, leis e normas nacionais• Cumprimento dos regulamentos• Posição do licenciamento• Infra-estrutura física• Força de trabalho e competência do pessoal• Custos e recursos• Condições sócio-políticas• Condições geográficas e geológicas• Oportunidade para cooperação com outros países	<ul style="list-style-type: none">• Características do rejeito• Escala de aplicação da tecnologia• Maturidade e robustez da tecnologia• Campo de aplicação da tecnologia• Complexidade e manutenção das instalações• Características do produto tratado• Expectativa de necessidades futuras• Redução de volume• Rejeitos secundários e compatibilidade com processos existentes• Potencial para intrusão• Estado da pesquisa e desenvolvimento• Salvaguardas e segurança nuclear

A solidificação, um processo de imobilização, visa a conversão dos rejeitos em uma forma sólida, reduzindo o potencial de migração ou dispersão dos radionuclídeos por processos naturais, durante o armazenamento, o transporte e a disposição final, além de garantir estabilidade e durabilidade. Genericamente a solidificação envolve o uso de uma matriz para fixar o rejeito, transformando-o em um monolito.

Na Tabela 2.4 são apresentadas algumas características dos principais processos usados para solidificar os RR.

TABELA 2.4

Principais características dos principais processos de solidificação de rejeitos de baixo e médio nível de atividade [5]

CARACTERÍSTICA		CIMENTO	BETUME	POLÍMERO
PROCESSO	Complexidade	Baixa	Alta/média	Alta
	Flexibilidade	Alta	Média	Alta
	Redução de volume	Negativa	Negativa	Positiva
	Custo	Baixo	Alto	Alto
PRODUTO DE REJEITO	Compatibilidade com correntes de rejeito	Média	Média	Alta
	Carga de rejeito	Média	Alta	Alta
	Resistência à compressão	Alta	Média/Alta	Baixa
	Resistência ao impacto	Alta	Média/Alta	Média
	Resistência ao fogo	Alta	Baixa/média	Baixa
	Estabilidade à radiação	Alta	Média	Média
	Retenção de radionuclídeos			
	* actínídeos	Alta	Baixa	Baixa
	* vida curta	Baixa	Alta	Alta

2.4 Deposição

O impacto ambiental causado pela deposição dos rejeitos depende de uma série de fatores, como da qualidade do rejeito tratado, de suas embalagens, das barreiras de engenharia e do sítio selecionado para o repositório, principalmente dos caminhos de liberação dos contaminantes para o meio ambiente. A migração dos radionuclídeos, através dos diversos meios que compõem o sistema de deposição, é considerada a via mais importante para esta liberação [6, 7, 8].

A avaliação do impacto ambiental tem como meta fornecer as premissas para o projeto do repositório e, conseqüentemente, para os critérios de aceitação dos produtos de rejeito que serão armazenados. O objetivo final é assegurar que não haja contaminação do meio ambiente nem dos seres vivos e que os níveis de exposição estejam dentro dos limites das normas de radioproteção. Esta avaliação é feita através de modelos matemáticos, cujos principais parâmetros são os dados de migração dos radionuclídeos nos meios que compõem o sistema de deposição

(produto de rejeito, material de recheio, barreiras de engenharia, sítio), como mostrado na Figura 2.2 [8, 9, 10].

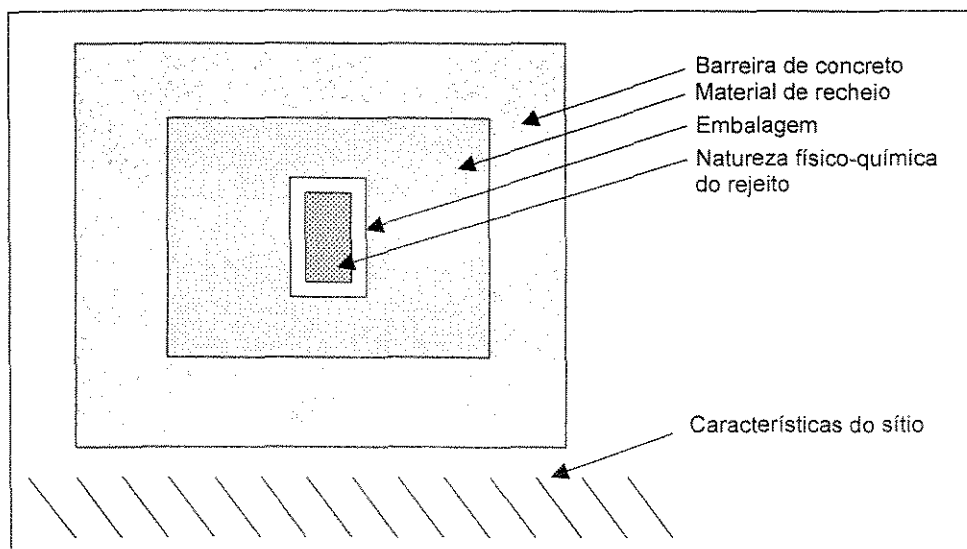


FIGURA 2.2

Diagrama mostrando as barreiras de um repositório de rejeitos

Internacionalmente tem sido considerado o conceito de barreiras múltiplas para repositórios de rejeitos radioativos. Desta forma as medidas de proteção são fornecidas pela aplicação deste princípio, levando-se em consideração interdependências entre as várias etapas da gerência de rejeitos. As múltiplas barreiras são apontadas como isolamento suficiente do rejeito do meio ambiente e limitação de liberações possíveis dos materiais radioativos, assegurando que falhas ou combinações de falhas, que poderiam levar a significantes conseqüências radiológicas, sejam muito pouco prováveis. Por isto é necessário que haja uma série de “critérios para a aceitação de rejeitos” e que só os produtos que atendam a estes critérios sejam aceitos para a deposição [5]. Como exemplo, na Figura 2.3 é apresentada a estratégia de deposição e uma imagem do repositório de El Cabril, Espanha [11].

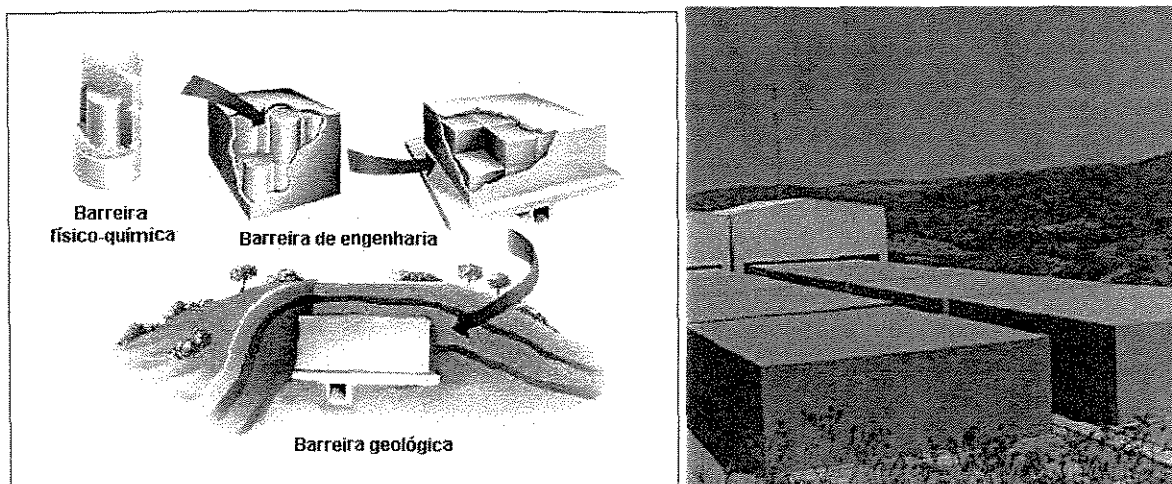


FIGURA 2.3
Repositório de El Cabril

A Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) engloba entre as barreiras de engenharia as seguintes partes do sistema de deposição: o produto de rejeito, a embalagem e o material tampão ou de recheio [6]. Na Tabela 2.5 são apresentadas estas barreiras, suas funções e exemplos.

TABELA 2.5
Barreiras de engenharia e suas funções [6]

BARREIRA DE ENGENHARIA	FUNÇÃO	E X E M P L O S	
		ALTO NÍVEL	BAIXO NÍVEL
Produto de Rejeito	Imobilização dos radionuclídeos	Vidro, "synroc", "pellets" de combustível gasto	Cimento, betume e resinas
Embalagem de Rejeito	Contenção	"Canister" de aço, titânio, casco de ferro, cerâmica ou metal-cerâmico, cobre	Tambores de aço
Tampão ou Recheio	Estabilizar as aberturas no subsolo, retardar o acesso da água subterrânea e a liberação ou transporte dos radionuclídeos	Bentonita, mistura de rocha moída, argila Para selar usam--se também resinas, betume e cimento	Areia, solo argila, e concreto

As barreiras de engenharia são projetadas para fornecer completo confinamento dos radionuclídeos presentes nos rejeitos por um período

predeterminado de algumas centenas a milhares de anos. Depois deste tempo elas podem ser degradadas, permitindo a penetração da água subterrânea no material de rejeito, mudando então sua função para limitadoras da liberação dos radionuclídeos dissolvidos, conforme eles se movem no ambiente geológico.

Para prever a efetividade das barreiras de engenharia quantitativamente como função do tempo, o projetista precisa de informações sobre suas propriedades físicas e químicas, como também sobre os processos geológicos do sítio que possam mudar essas propriedades.

2.4.1 Produto de rejeito

O primeiro papel do produto de rejeito é restringir a liberação dos radionuclídeos nele contidos. Seus parâmetros mais importantes são: a estabilidade, a distribuição dos radionuclídeos na matriz e a taxa de degradação física e química da matriz [6].

Para os rejeitos de baixo e médio nível (por exemplo: concentrados de evaporador, lamas ou sólidos compactados) é geralmente usada uma matriz de solidificação, como cimento, betume, polímero, na qual eles são incorporados.

O rejeito combustível de baixo nível, como roupa, plástico, papel ou madeira, deve ser preferencialmente incinerado e as cinzas incorporadas em uma matriz, a menos que seja possível estocá-las até que os radionuclídeos decaiam a níveis insignificantes.

2.4.2 Embalagem do produto de rejeito

A embalagem é projetada primeiramente para fornecer completo isolamento do produto de rejeito durante um tempo definido, o que é determinado pela resistência à corrosão e à desintegração de seu material de construção. Em alguns casos ela também é concebida para ter a função adicional de blindagem durante as operações de deslocamento e armazenamento do rejeito. Para assegurar maior durabilidade a embalagem deve ser construída com materiais selecionados resistentes à corrosão, tais como o cobre, o aço inoxidável, o titânio e a cerâmica, ou com uma espessura maior de parede, para permitir somente corrosão parcial. Em ambos os casos, os efeitos esperados do ambiente físico e

geoquímico, após o fechamento do repositório, têm um papel muito importante nesta durabilidade e devem ser avaliados [6].

2.4.3 Material tampão e de recheio

A escolha deste material é muito importante e está diretamente ligada ao sistema de deposição escolhido. Esta importância está relacionada com as funções que ele exerce no repositório, quais sejam:

- preencher os vazios em torno da embalagem de rejeito e nas áreas escavadas, para com isso aumentar a estabilidade estrutural e diminuir a permeabilidade;
- reduzir o volume e o movimento da água, como também a formação de canais dentro do repositório;
- fornecer tamponamento químico em torno das embalagens do rejeito;
- retardar a migração dos radionuclídeos que poderiam ser liberados do rejeito através da embalagem e
- fornecer condução de calor.

A bentonita, as zeólitas e outras argilas, bem como vários cimentos têm sido considerados para este fim; pode ser feita também a mistura destes com a rocha original triturada do sítio. Neste último caso resultados empíricos devem ser coletados durante a construção do repositório [6].

2.4.4 Sítio

O local selecionado para o repositório deve atender aos seguintes requisitos principais: estabilidade a longo prazo, comportamento futuro previsível e permitir operacionalidade. Porém a seleção do sítio, além de atender aos requisitos técnicos, está ligada a aspectos sociais e políticos e deve ser demonstrada que é adequada. Para isto é feita a análise do desempenho do repositório quanto à segurança, desde as primeiras etapas do projeto conceitual.

Informações como o tamanho, o acesso, o terreno, a inexistência de recursos naturais (minerais, hidrocarbonetos, energia geotérmica e outros), a densidade populacional, os impactos em potencial no ambiente natural e a capacidade de caracterizar o ambiente geológico, entre outras, devem limitar a

escolha a alguns locais possíveis. Estes então deverão ser estudados mais detalhadamente até que se eleja o local definitivo.

2.5 Cimentação

A cimentação foi a primeira e é a técnica mais largamente aplicada para o condicionamento dos rejeitos de níveis de radiação baixo e médio. Tem como principal objetivo transformá-los em um produto solidificado, homogêneo, íntegro e fisicamente resistente, reduzindo, principalmente, o potencial de migração dos contaminantes para o meio ambiente. Isto porque quanto menor for a liberação dos radionuclídeos a partir do produto, menor serão os requisitos das demais barreiras e mais segura será a deposição.

Comparada com outras técnicas de solidificação, ela é relativamente simples e barata. A qualidade do produto final cimentado depende muito da composição do rejeito e do tipo de cimento usado. Portanto, uma das propriedades que deve ser avaliada é a compatibilidade do rejeito com o cimento

A tecnologia da cimentação, associada ao uso de vários tipos de aditivos e produtos químicos, está em contínuo desenvolvimento, de modo a melhorar as características do produto cimentado de rejeito de acordo com o aumento dos requisitos de qualidade estabelecidos pelas normas. As principais vantagens e desvantagens [12] do uso do cimento na solidificação são:

Vantagens:

- material e tecnologia bem conhecidos;
- compatível com muitos tipos de rejeito;
- a maioria dos rejeitos aquosos ligam-se quimicamente a ele;
- baixo custo do cimento;
- boa capacidade de blindagem;
- nenhum problema de vapor;
- boa resistência à compressão e ao impacto;
- baixa lixiviabilidade para vários nuclídeos;
- nenhuma água livre, quando bem formulado;
- endurecimento rápido e controlado, sem precipitação ou segregação durante a cura.

Desvantagens:

- alguns rejeitos afetam a cura ou geram produtos ruins;
- pode ser necessário o ajustamento do pH dos rejeitos;
- inchamento ou quebra pode ocorrer quando alguns produtos são expostos à água;
- aumento do volume do rejeito final a ser armazenado;
- calor excessivo pode ser desenvolvido durante a cura para algumas combinações de rejeito e cimento;
- problemas de poeira (pó) podem ocorrer em alguns sistemas;
- difícil manutenção dos equipamentos para alimentação de pós.

Existe uma grande faixa na composição dos materiais cimentícios usados como agentes de solidificação para os rejeitos radioativos. Sua forma mais comum apresenta como principais constituintes CaO , SiO_2 e Al_2O_3 . A Figura 2.4 apresenta o diagrama ternário, no qual estes três componentes aparecem em diferentes quantidades formando os diferentes cimentos disponíveis [12]. Os cimentos Portland (CP), que em muitos países são fabricados com materiais que estão disponíveis localmente, são os cimentos mais comumente usados, devido à sua alta resistência mecânica [13]. O CP é um cimento hidráulico, constituído basicamente de silicatos e aluminatos de cálcio. Sua composição típica é mostrada na Tabela 2.6.

O processo de cimentação para a imobilização de rejeitos radioativos é simples e baseia-se na mistura do cimento com o rejeito, que pode estar na forma de solução, de lama ou de sólido.

A adição de água e/ou outros materiais é feita de acordo com o tipo de rejeito a ser imobilizado e com as exigências técnicas necessárias às etapas seguintes, pelas quais o produto cimentado terá que passar. Essa mistura, então, sofrerá cura (processo de endurecimento) e solidificar-se-á.

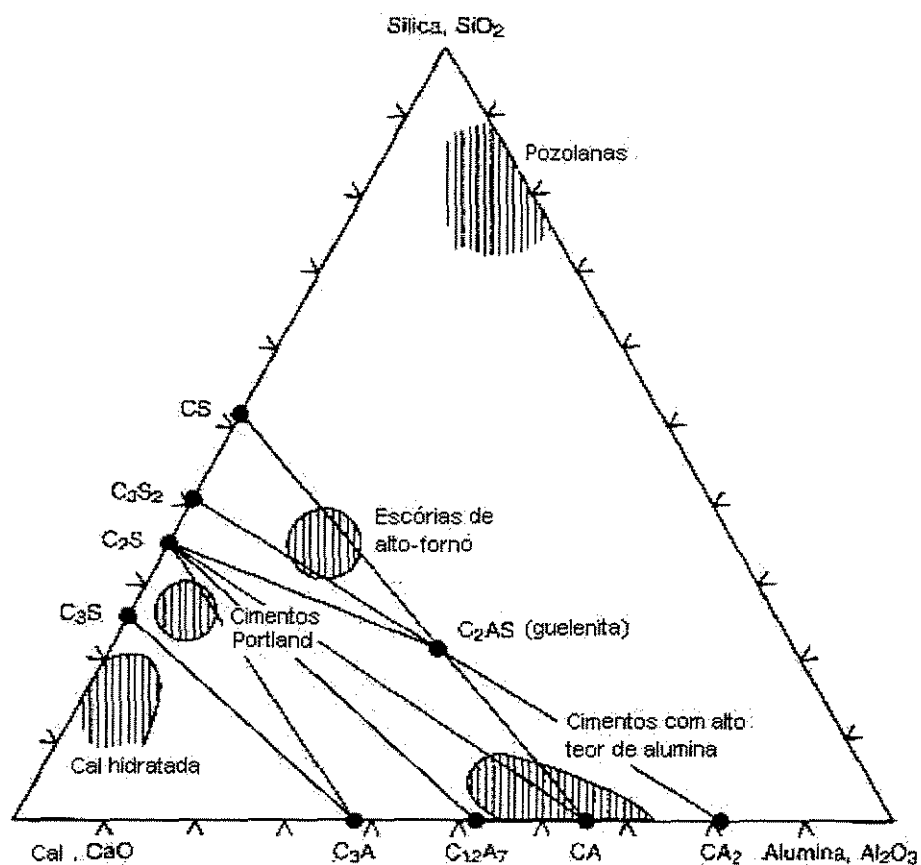


FIGURA 2.4

Diagrama ternário para as principais composições dos cimentos [12]

TABELA 2.6

Composição típica de um cimento Portland comum (óxidos) [13]

ÓXIDOS	% EM PESO
CaO	64
SiO_2	21
Al_2O_3	6,5
Fe_2O_3	2,5
MgO	2,5
SO_3	2,1

Os processos de mistura do rejeito com o cimento podem ser divididos em duas categorias: diretamente dentro da embalagem ou fora dela. No primeiro caso o rejeito, o cimento e outros materiais são colocados diretamente dentro da embalagem de deposição e então é feita a mistura. As técnicas usadas nesta mistura incluem tombamento, rolamento e o uso de um misturador, cujas pás podem ser retiradas, para posterior uso, ou deixadas na embalagem. Alternativamente os rejeitos e a matriz são misturados e então transferidos para a embalagem final de deposição. Estas misturas podem ser realizadas em processos contínuos ou em batelada.

As instalações de cimentação podem ainda ser fixas ou móveis. Nas primeiras, os rejeitos são levados até ela para serem processados e as segundas são transportadas para os locais onde os rejeitos são gerados.

Na Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto, Angra 1 e no Centro de Pesquisas de Karlsruhe (Forshungszentrum Karlsruhe – FZK) os rejeitos são cimentados em uma instalação fixa com mistura dentro da embalagem, assim como o sistema desenvolvido pela ABB ATOM AB na Suécia. No CDTN/CNEN, Belo Horizonte e na instalação da Comissão de Energia Atômica (Comissariat à l’Energie Atomique – CEA) de Valduc, França, é usado o sistema de cimentação em batelada fora da embalagem de transporte e deposição. As instalações DEWA e FAFNIR são exemplos de unidades móveis de cimentação [12, 13].

2.6 Avaliação do Produto Cimentado

As características do produto de rejeito solidificado devem ser avaliadas de modo a atender aos requisitos de segurança. Isto significa, em última análise, garantir que não haja liberação de radioelementos para o ambiente, em concentrações acima de limites, que possam prejudicar ao homem. Essa avaliação visa, portanto, assegurar as etapas envolvendo o manuseio, o acondicionamento, o armazenamento intermediário, o transporte e a deposição dos produtos de rejeito.

O produto de rejeito é definido como o sólido resultante do processo de cimentação, devendo ser monolítico sem água livre. Tendo em vista o conceito das multibarreiras para o repositório, o produto de rejeito é considerado a primeira

barreira e tem a função de reter os componentes radioativos, permitindo que ocorra um decaimento significativo da radiação antes que eles sejam liberados.

Na busca de um produto cimentado de melhor qualidade são feitas inúmeras misturas de cimento, rejeito (simulado e real), aditivos (naturais e químicos) e traçadores (inativos e ativos) e realizados vários ensaios. As formulações com cimento têm de ser otimizadas para obter produtos de qualidade, consistentes e aceitáveis. Os rejeitos que inibem a cura do cimento podem requerer algum pré-tratamento para neutralizar seus efeitos deletérios na matriz, ou limitação na quantidade incorporada [5, 12].

Os aditivos são usados em casos onde a retenção do rejeito pela matriz é baixa ou para aumentar a compatibilidade entre o cimento e o rejeito. Além disto, existem, ainda, materiais que são usados para modificar algumas características físicas da mistura, com o objetivo principal de facilitar o processo de cimentação. Os mais usados são os aceleradores e retardadores de pega e os fluidificantes.

Algumas propriedades são muito importantes para assegurar que o produto de rejeito possa resistir a agressividade do clima e do ambiente. A segregação das correntes de rejeito é essencial, uma vez que alguns rejeitos não são facilmente cimentados e eles necessitam tratamento especial antes da solidificação. O principal objetivo das pesquisas neste campo é melhorar a eficiência do processo de cimentação e as características do produto de rejeito, o que significa aumentar a relação rejeito/produto mantendo a qualidade do produto.

As propriedades do produto cimentado a serem avaliadas podem ser agrupadas em físicas, químicas, físico-químicas, mecânicas e radioquímicas. Esse agrupamento é utilizado somente para simplificar, uma vez que todas as propriedades do produto estão interrelacionadas [14]. As relações água/cimento (a/c) e rejeito/cimento (r/c) determinam a maioria das propriedades do produto solidificado, tais como, a porosidade, a permeabilidade e os gradientes de temperatura interna devido à hidratação. Estas propriedades, por sua vez, também influenciam as propriedades mecânicas.

2.6.1 Características físicas, químicas e físico-químicas

A resistência à lixiviação é a principal característica na análise do produto, uma vez que ela é a medida da retenção dos radionuclídeos e de outros contaminantes no produto, quando ele entra em contato com a água. A lixiviação é influenciada por diferentes fatores, sendo um fenômeno complexo governado por diferentes mecanismos e do qual se sabe muito pouco [15].

Para se obter um produto com boa resistência à lixiviação é importante identificar os mecanismos que governam este processo, os lixiviantes que provavelmente entrarão em contato com ele, bem como pesquisar os aditivos que possibilitem um aumento na retenção dos radioelementos pela matriz. Para avaliar a lixiviação dos contaminantes foram desenvolvidos diferentes métodos de ensaio, cuja escolha depende principalmente do campo de aplicação dos resultados.

Os aditivos são usados em casos onde a retenção do rejeito pela matriz é baixa, ou para aumentar a compatibilidade entre o cimento e o rejeito. O uso de aditivos naturais, como as argilas, tem como objetivo melhorar a retenção dos radioelementos, porém a sua presença, muitas vezes, pode reduzir a resistência mecânica do produto. Portanto, deve-se fazer um balanço dos dois efeitos para que se obtenha um produto dentro das especificações requeridas.

A homogeneidade é uma característica do produto, indicando o grau de dispersão dos componentes do rejeito na matriz. Em todos os casos, o produto final consiste de duas ou mais fases e a dispersão destas fases, ou dos radioelementos individualmente, na matriz pode afetar características físico-químicas ou mecânicas do produto final. Esta propriedade é geralmente avaliada qualitativamente.

A água livre é a água residual, que não reagiu durante o processo de solidificação do produto cimentado. A presença desta água pode trazer problemas de corrosão entre o produto e sua embalagem, bem como aumentar o potencial de migração de radioelementos solúveis. Para minimizar este problema, o primeiro passo é controlar a dosagem da mistura. Além disso, podem ser usados aditivos que absorvam esta água, fixando-a no produto. Os limites de aceitação de um

produto contendo água livre vão depender das condições de transporte e deposição.

A densidade do produto está relacionada com a sua rigidez. Quanto mais denso for o produto, menos porosidade ele apresentará, sendo, portanto, mais resistente. A densidade mínima aceitável dependerá, como no caso anterior, do tipo de deposição que o produto terá.

O produto cimentado é poroso e são definidos dois tipos de porosidade. Entende-se por porosidade aberta aquela em que os poros são interconectados. Nos casos em que os poros se apresentam isolados, diz-se que ela é fechada. Esta característica afetará outros parâmetros ligados às propriedades físico-químicas e mecânicas do produto, como, por exemplo, a taxa de lixiviação.

A permeabilidade é a capacidade de penetração de líquidos e gases no produto. Existe, geralmente, uma correlação entre a permeabilidade e a porosidade, pois o fluxo aquoso e gasoso através do produto é essencialmente através de sua estrutura de poros, portanto depende do tamanho, da distribuição e conexidade dos poros.

Os produtos e suas embalagens devem ser confeccionadas de modo a resistir à corrosão durante o período previsto para o armazenamento [13]. Uma das maneiras de aumentar esta resistência é estudar as compatibilidades rejeito/matriz, produto/embalagem e embalagem/repositório. Nas Tabelas 2.7 e 2.8 são apresentados alguns rejeitos e sua compatibilidade com o cimento, bem como as embalagens usuais que são compatíveis com o produto cimentado, respectivamente.

A partir de fenômenos de radiólise, de reações químicas entre o rejeito e a matriz ou da decomposição de materiais orgânicos, podem ser gerados gases no produto, que podem causar pressurização da embalagem, criar meios mais corrosivos e dispersar ou liberar diretamente os radioelementos presentes no produto.

O ataque microbiológico pode levar à degradação química e física dos produtos contendo rejeito orgânico, resultando numa redução da sua estabilidade física. Nestes casos pode haver também um aumento na lixiviação, principalmente

devido ao aumento da superfície do produto ocasionado pela sua ruptura. Também favorecem a lixiviação a transformação do estado químico dos radioelementos presentes em formas mais móveis, bem como a formação de complexos que, preferencialmente, mobilizam os radioelementos. Embora micróbios e materiais orgânicos ocorram provavelmente de forma natural no repositório, o potencial de degradação microbiana pode ser diminuído limitando-se a presença de materiais biológicos no produto cimentado.

TABELA 2.7
Compatibilidade entre o rejeito e a matriz de cimento [13]

MATERIAL INCORPORADO	CIMENTO	CIMENTO + ADITIVO
Boratos	Boa com aditivos ¹	Boa ¹
Na ₂ SO ₄	Média ²	Média
NaNO ₃	Boa ³	Boa
Nitratos	Boa	Boa
NH ₄ NO ₃	Ruim	Ruim
Fosfatos	Boa ⁴	Boa
Carbonatos	Boa	Boa
Redutores	Nenhum efeito	Não avaliada
Oxidantes	Nenhum efeito	Não avaliada
Agentes complexantes	Ruim ⁵	Ruim
Sabões	Ruim	Ruim
Líquidos orgânicos	Ruim	Ruim
Trocadores iônicos	Média	Média
Lamas	Boa	Boa
Meios filtrantes	Boa	Boa
Itens grandes	Boa	Boa

¹ Aditivos como sais de cálcio

² 25g/l, no máximo

³ 150g/l, no máximo

⁴ 250g/l, no máximo

⁵ Se > 0,5g/l

Boa = não requer nenhuma atenção especial

Média = requer, provavelmente, alguma atenção

Ruim = o produto de rejeito conseguido é ruim, não pode ser melhorado.

TABELA 2.8
Compatibilidade entre o produto cimentado e o recipiente [13]

EMBALAGEM	COMPATIBILIDADE
Tambor metálico (aço doce)	Boa
Tambor metálico com revestimento interno de resina	Excelente
Recipiente de concreto	Boa
Recipiente de concreto impregnado com polímero (PIC)	Boa

2.6.2 Características mecânicas

Certos valores mínimos são requeridos para algumas características mecânicas do produto para que ele resista a tensões a longo prazo durante o seu manuseio, armazenamento, transporte e deposição, em condições normais e de acidente.

A resistência à compressão, que é a medida da resistência às pressões uniformemente aplicadas ao produto até a sua deformação ou quebra, é uma das características mecânicas mais importantes. Ela está relacionada com o grau de compactação e com a rigidez do produto. Portanto, os produtos menos porosos, mais homogêneos e que apresentam fissuras e trincas mínimas tendem a fornecer maiores valores de resistência à compressão [16].

Além disto, o produto deve ser resistente a impactos que possam ocorrer, principalmente, durante o manuseio e o transporte. Por isto, devem ser realizados ensaios para verificar a liberação de constituintes do produto durante o impacto, inclusive com análise do tamanho e da quantidade dos finos, pois estes apresentam riscos de inalação e podem ser espalhados rapidamente em grandes áreas [17].

Na Tabela 2.9 são apresentados valores para parâmetros de produtos cimentados obtidos em diversas instalações nucleares e na Tabela 2.10 são sintetizados as principais propriedades que devem ser avaliadas para a qualificação destes produtos.

TABELA 2.9
Alguns parâmetros e valores para produtos cimentados [13]

PARÂMETRO	CIMENTO	CIMENTO + ADITIVO
Densidade (g/cm ³)	1,5 a 2,3	1,3 a 2,0
Resistência à compressão (MPa)	3,2 a 70	-
Resistência à tensão (MPa)	2,0 a 4,0	-
Resistência ao impacto (J/m)	15 a 22	-
Resistência ao fogo	Não inflamável. Se contém resinas de troca iônica pode ser inflamável	Chama que se extingue por si mesma
Resistência ao calor	Boa, se a temperatura a longo prazo < 200°C	Não avaliada. Provavelmente similar ao cimento
Biodegradação	Efeitos insignificantes	Não avaliada. Provavelmente similar ao cimento

TABELA 2.10
Características avaliadas na qualificação de produtos cimentados [12, 18]

CARACTERÍSTICAS GERAIS	CARACTERÍSTICAS ESPECÍFICAS
Composição	Composição do rejeito incorporado Composição da matriz Inventário dos radionuclídeos Relação rejeito : cimento : aditivo Relação água/cimento
Características Físicas e Químicas	Comportamento quanto à corrosão Comportamento quanto à lixiviação Liberação de fluidos e gases Propriedades mecânicas Densidade
Influência do Processo de Fabricação	Homogeneidade Porosidade Fraturas e trincas
Propriedades Térmicas	

2.6.3 Características radioquímicas

As características físicas e químicas do produto podem mudar como resultado das radiações α , β e γ . Consequentemente o tipo e o conteúdo de radionuclídeos presentes no rejeito são parâmetros que devem ser bem determinados para a avaliação da qualidade do produto solidificado. Em rejeitos de nível baixo e médio os isótopos mais importantes são o ^{137}Cs , o ^{60}Co e o ^{90}Sr , devido às suas meias-vidas, pois têm de ser imobilizados durante longos períodos. O efeito da radiação α em produtos contendo rejeitos de atividade baixa e média não é bem conhecido, estando ainda em estudos [13].

Se no produto solidificado estiverem presentes compostos não resistentes à radiação, como água, nitratos e sulfatos, poderão ser produzidos gases radiolíticos. Uma vantagem apresentada pelos produtos de cimento é que, dependendo do volume dos gases, estes podem ser absorvidos por ele, devido à sua porosidade. Em misturas rejeito/cimento contendo menos que $3,7 \cdot 10^{13} \text{ Bq/m}^3$, em geral, não se esperam problemas devido à liberação de gases radiolíticos [13].

2.7 Bentonita

A bentonita é uma argila cujo principal constituinte é a montmorilonita (Figura 2.5), um silicato hidratado de alumínio contendo magnésio e que vem acompanhado, entre outros por quartzo, mica, feldspato, piritita e cal [19].

Argila é um nome genérico dado a diversos materiais. Segundo SANTOS [20], argila é uma rocha finamente dividida, constituída essencialmente por argilominerais, podendo conter minerais que não são argilominerais, como a calcita, a dolomita, a gipsita, o quartzo e outros e, ainda, matéria orgânica e outras impurezas. Suas características básicas são possuir elevado teor de partículas de diâmetro abaixo de $2 \mu\text{m}$, possuir capacidade de troca iônica entre 3 e 150 meq/100g de argila e, quando pulverizada e umedecida, tornar-se plástica. Além disto, após a secagem, torna-se dura e rígida, atingindo a dureza do aço após a queima em uma temperatura elevada (superior a 1000°C).

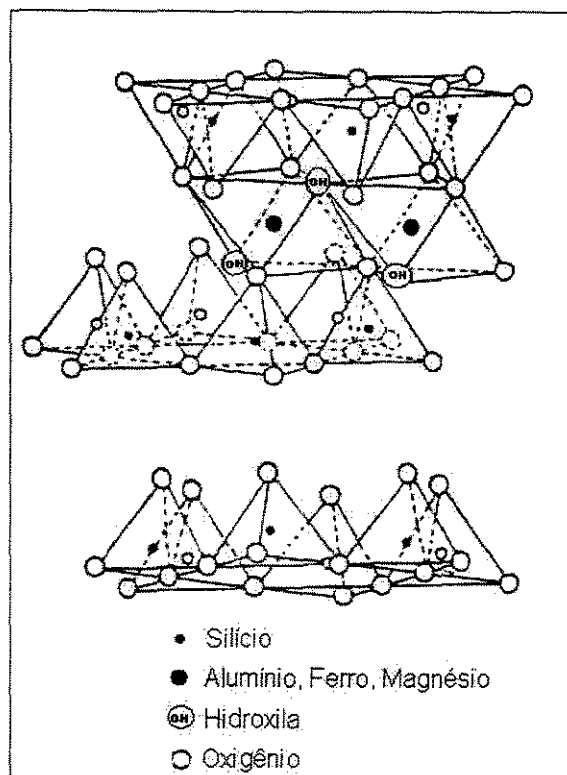


FIGURA 2.5
Estrutura cristalina na montmorilonita [21]

Os argilominerais são silicatos de alumínio hidratados, contendo em alguns tipos outros elementos como magnésio, ferro, cálcio, sódio, potássio, lítio etc. Apresentam estrutura reticulada ou rede cristalina em camadas (lamelar) ou estrutura fibrosa, constituídos por folhas, planos ou camadas contínuas de tetraedros de SiO_4 , ordenados em forma hexagonal [20].

As bentonitas originam-se da decomposição de cinzas vulcânicas ou de uma alteração especial por ações hidrotermais de feldspato de algumas rochas. Seus argilominerais são constituídos por duas folhas tetraédricas de silicato e uma folha octaédrica central, que estão ligadas entre si por oxigênios comuns às folhas. Apresentam alto teor de matéria coloidal, tendo grande capacidade de absorção. Elas têm, como principais características a presença de cristais pequenos, alta superfície específica e o excesso de cargas negativas apresentado

pelos cristais, o que ocasiona o alojamento de cátions com capacidade de troca [19].

As bentonitas apresentam, ainda, capacidade de inchar internamente. Este fenômeno ocorre devido ao desequilíbrio de cargas elétricas entre os pacotes de camadas. Um excesso de carga negativa é compensado pela absorção de íons positivos com capacidade de troca (em geral de Ca, Mg e Na). Estes íons localizam-se nas bordas dos cristais e tendem, na presença de água, a hidrolisarem-se. Isto resulta no alojamento de água entre as camadas de silicato, aumentando, por conseguinte, a distância entre elas. Ao mesmo tempo a força de ligação entre as camadas torna-se menor, de modo que estas mantêm certa mobilidade entre si (Figura 2.6) [19, 22, 23].

O colorido das bentonitas é muito variado, desde a cor creme até o vermelho, ou do esverdeado ao azul-escuro. Sua consistência "in natura" é macia ou saponácea, apresentando fratura conchoidal, radiada e, algumas vezes, lisa. A espessura da camada argilosa varia de poucos centímetros a alguns metros [22]. Elas podem ser cálcicas ou sódicas, dependendo de qual seja o principal cátion absorvido.

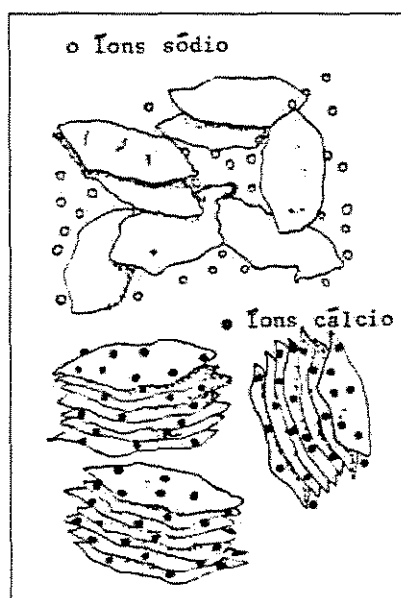


FIGURA 2.6
Inchamento das bentonitas [22]

No Brasil as reservas e produção de bentonita existentes, que se destacam, estão no estado da Paraíba, que possui depósitos de bentonita policatiônica com boa capacidade de troca iônica [19].

2.8 Lixiviação em Produtos Contendo Rejeitos Radioativos

Uma das mais importantes causas do retorno ao homem da radioatividade contida no produto solidificado de rejeito é na ocorrência da lixiviação dos radionuclídeos nas etapas de transporte e armazenamento, decorrente da sua exposição às águas da chuva, de superfície, de lençóis subterrâneos ou do mar. Por esta razão a estabilidade química de um produto deve ser necessariamente avaliada. Esta avaliação é feita através de ensaios de lixiviação, que medem direta ou indiretamente a liberação dos radionuclídeos, ou de seus análogos inativos, num meio aquoso em função do tempo.

Existem vários fatores que influenciam a lixiviação dos radioelementos, os principais sendo: o tempo, a temperatura, a pressão, a relação entre a área superficial do produto e o volume de lixiviante, além da composição, superfície e porosidade do produto [15].

Os metais de transição, como Co, Ni e Fe, e elementos transurânicos geralmente são lixiviados em taxas muito baixas porque o pH alto da água do poro do produto cimentado requer que estes elementos estejam em formas que tenham solubilidades extremamente baixas. As taxas de lixiviação de cézio são usualmente altas, controladas essencialmente pela porosidade e tortuosidade do produto de rejeito e alguma adsorção que possa ocorrer. A lixiviação do Sr é tipicamente uma ou duas ordens de grandeza menor do que a do Cs por causa das reações entre o Sr e os componentes do cimento. Componentes menores do rejeito podem alterar significativamente o comportamento da lixiviação dos radionuclídeos [12].

Diferentes experimentos têm sido feitos para avaliar os diversos parâmetros afetando esta liberação e existe uma grande variedade de métodos de testes, que são desenvolvidos e adaptados por técnicos da área, de acordo com suas necessidades. Os mais conhecidos são o estático, o semi-dinâmico e o

acelerado [10, 12, 18, 24 – 34]. A escolha do método para os ensaios de lixiviação é, geralmente, guiada pela aplicação dos resultados, entre os quais se incluem:

- a avaliação radiológica para o armazenamento do rejeito;
- a demonstração da conformidade do processamento, do armazenamento, do transporte e da deposição do rejeito com os regulamentos;
- a comparação de várias matrizes para a imobilização;
- a avaliação da segurança da qualidade das operações em usinas de solidificação;
- a tentativa de entendimento dos mecanismos da lixiviação e
- a avaliação da aceitabilidade de um produto de rejeito imobilizado.

Não existe ainda um consenso internacional em torno de um método de teste de lixiviação, através do qual se possam comparar os resultados obtidos por diferentes laboratórios, por diferentes técnicos e em diferentes processos. Os métodos mais utilizados são os recomendados pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) [24], pela International Standards Organization (ISO) [25] e pela American Nuclear Society (ANS) [35]. Na Tabela 2.11 são apresentados os principais parâmetros dos métodos mais usados para avaliar a lixiviabilidade e na Tabela 2.12 alguns resultados para ensaios de lixiviação.

TABELA 2.11
Características de alguns métodos de ensaio de lixiviação [18, 26]

ENSAIO	LIXIVIANTE	S/V (cm ⁻¹)	RENOVAÇÃO DO LIXIVIANTE	DURAÇÃO (d)
IAEA [24]	Deionizada	≤ 0,1	Diária (uma semana); semanal (oito semanas); mensal (seis meses); bianual (cada ano)	Ilimitada
ISO [25]	Deionizada	0,1 – 0,2	Diária (cinco dias); duas vezes (2ª semana); semanal (quatro semanas); mensalmente	Ilimitada
MCC-1	Deionizada	0,1 ± 0,005	Sem renovação	3, 14, 28
MCC-5	Destilada	Irrelevante	Fluxo contínuo de água	3, 14
ANS-16-1 [35]	Deionizada	0,1 ± 0,005	2, 7 e 24 h; diária (quatro dias) e depois 14, 28 e 43 dias	90
GOST-29114-91	Destilada	0,1 – 0,3	Diária (três dias), semanal (depois de sete dias), mensalmente.	28 a mais
PCT	Deionizada	19,55	Sem renovação	7
ASTM [26]	Deionizada	0,01±0,0002	2, 7 e 24 h; diária (dez dias)	11

S/V = relação da área exposta pelo volume de lixiviante

TABELA 2.12

Alguns resultados de ensaios de lixiviação para produtos cimentados [13]

MÉTODO DO ENSAIO DE LIXIVIAÇÃO	RADIO-ELEMENTO	T A X A D E L I X I V I A Ç Ã O			
		C I M E N T O		C I M E N T O + A D I T I V O	
		(cm/d)	(m/s)	(cm/d)	(m/s)
Teste rápido usando extrator Soxhlet	Césio	10^{-1} a 10^{-2}	$1,16 \times 10^{-8}$ – $1,16 \times 10^{-9}$	10^{-2}	$1,16 \times 10^{-9}$
	Cobalto	5×10^{-2}	$5,79 \times 10^{-9}$	5×10^{-3}	$5,79 \times 10^{-10}$
Teste a longo prazo sugerido pela AIEA (amostras pequenas)	Césio	10^{-3}	$1,16 \times 10^{-10}$	$1,2 \times 10^{-5}$	$1,39 \times 10^{-12}$
	Estrôncio	10^{-5}	$1,16 \times 10^{-12}$	$3,2 \times 10^{-7}$	$3,70 \times 10^{-14}$
	Cobalto	n. d.	n. d.	$1,5 \times 10^{-5}$	$1,74 \times 10^{-12}$
	Plutônio	10^{-5}	$1,16 \times 10^{-12}$		
Teste a longo prazo sugerido pela AIEA (amostras grandes)	Césio	10^{-2} a 10^{-3}	$1,16 \times 10^{-9}$ – $1,16 \times 10^{-10}$	n. d.	n. d.
	Estrôncio	$< 10^{-3}$	$< 1,16 \times 10^{-10}$	n. d.	n. d.
	Plutônio	$< 10^{-6}$	$< 1,16 \times 10^{-13}$		

n. d.: não disponível

Para avaliação da segurança, economia e engenharia dos sistemas propostos para o tratamento, o armazenamento, o transporte e a deposição dos rejeitos, são necessárias estimativas das quantidades de radioatividade provenientes do produto de rejeito solidificado que possam entrar no ambiente, levando-se em conta que o material incorporado entrará eventualmente em contato com soluções lixiviantes.

A lixiviação de produtos cimentados é controlada por muitos mecanismos de liberação, entre eles estão a difusão, a sorção e a solubilidade, dependendo do elemento estudado. No momento muitos países estão tentando modelar os mecanismos mais importantes de liberação dos radionuclídeos de modo a estabelecer uma base melhor para extrapolações a longo prazo dos dados de lixiviação. Um dos métodos utilizados para essa avaliação consiste em ajustar dados obtidos em ensaios de lixiviação, durante um período confiável, a equações de transporte de massa e tentar extrapolar estes resultados para períodos maiores.

Devido à porosidade dos produtos cimentados, espera-se que a lixiviação dos radioelementos ocorra por difusão através destes poros, sendo este

considerado normalmente o mecanismo de transporte dominante. Porém a difusividade pode ser influenciada, em maior ou menor intensidade, por outros processos como dissolução, sorção, efeitos de superfície e corrosão.

O cézio 137 é um radionuclídeo que não reage com o cimento. Por esta razão alguns materiais são adicionados na cimentação de rejeitos contendo este elemento, de modo a melhorar a sua retenção no produto. Esta adição pode influenciar no mecanismo de sua lixiviação, que não poderá mais ser considerado como unicamente difusão. Um destes casos ocorre quando se adiciona ao produto argilas com alta capacidade de sorção.

ATKINSON desenvolveu um modelo sofisticado especificamente para produtos de rejeitos cimentados [34, 37]. Este modelo baseia-se no fato de que a matriz de cimento tem aproximadamente 30% de porosidade aberta e é portanto, suscetível ao ataque interno da água numa rede de poros de alta difusividade. Este modelo e os demais citados anteriormente são apresentados com detalhes por TELLO [14].

Deve ser considerado também para as previsões a longo prazo o efeito do decaimento radioativo. Na Tabela 2.13 são mostrados os principais modelos de transporte de massa, que têm sido usados para descrever a lixiviação de produtos cimentados contendo rejeitos [38, 39].

TABELA 2.13
Alguns modelos de mecanismos de transporte [39]

MEIO	MECANISMO DE TRANSPORTE	EQUAÇÃO DE LIBERAÇÃO PARA AS ESPÉCIES MÓVEIS (FRAÇÃO DE LIBERAÇÃO ACUMULADA) ^(a)
Semi-infinito, homogêneo, quimicamente inerte	Difusão	$\frac{\Sigma a_n}{A_o} \cdot \frac{V}{S} = 2 \left(\frac{Dt}{\pi} \right)^{1/2}$
Semi-infinito, concentração inicial uniforme	Difusão+dissolução dependente da concentração	$\frac{\Sigma a_n}{A_o} \cdot \frac{V}{S} = (kD)^{1/2} \left[\left(t + \frac{1}{2k} \right) \text{erf}(kt)^{1/2} + \left(\frac{t}{k\pi} \right)^{1/2} e^{-kt} \right]$
Semi-infinito, concentração inicial uniforme	Difusão+dissolução da superfície (contorno móvel)	$\frac{\Sigma a_n}{A_o} \cdot \frac{V}{S} = (RD)^{1/2} \left[\left(t + \frac{1}{2R} \right) \text{erf}(Rt)^{1/2} + \left(\frac{t}{\pi R} \right)^{1/2} e^{-Rt} + t \right]$

^(a) Σa_n = somatório da atividade liberada no período n

A_o = atividade total inicial da espécie

D = constante de difusão

erf = função erro

(V/S) = razão volume/superfície

t = tempo

k = constante da taxa de dissolução

$R = U^2/4D$, onde U = velocidade de contorno móvel

3. MATERIAIS E MÉTODOS

No Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN da Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN, em Belo Horizonte, vem sendo conduzido um programa para avaliar as características de algumas barreiras que compõem um repositório, incluindo o produto de rejeito, suas embalagens, o material de recheio, o concreto e o solo.

Em 1979 foi iniciado um trabalho com o objetivo de pesquisar materiais naturais nacionais, que pudessem ser utilizados no processo de cimentação de rejeitos radioativos. Fez-se primeiramente um levantamento dos materiais naturais comercialmente disponíveis no país. As argilas foram mais detalhadamente estudadas, devido à sua grande utilização industrial, à sua disponibilidade comercial, à sua existência em todo o território nacional e às suas propriedades físicas e químicas apropriadas para o objetivo que se pretendia [19].

No estudo do produto de rejeito, a pesquisa está voltada para a obtenção de um produto, cujas características físicas, químicas e radiológicas permitam que sua integridade seja cada vez mais prolongada. A meta principal é a retenção dos contaminantes na matriz, uma vez que quanto menor for a liberação dos radionuclídeos a partir do produto, menor serão os requisitos das demais barreiras e mais segura será a deposição.

O produto de cimento, por ser poroso, tem a desvantagem de, quando em contato com a água, permitir a liberação dos íons solúveis, que não estejam ligados quimicamente à matriz.

Um exemplo é o cério presente em rejeitos de atividade baixa e média. Ele não reage química nem fisicamente com a matriz de cimento, pois não existem minerais insolúveis deste elemento precipitáveis nesta matriz e então ele permanece sob a forma de um sal muito solúvel, sendo facilmente lixiviável [28]. Além disso o seu isótopo ^{137}Cs é um dos produtos de fissão que tem meia-vida mais longa (31,1 anos). Por isto, sua lixiviação, a partir dos produtos cimentados, vem sendo exaustivamente estudada [30, 31, 36, 38, 40 – 46].

Muitos materiais têm sido testados, visando fixar estes radioelementos, principalmente os de meia-vida longa, de uma maneira irreversível no produto cimentado. Dentre eles, têm-se as pozolanas, o ferrocianeto de cálcio, a clinoptilolita, a ilita, a vermiculita e a bentonita [19, 28 – 30, 32, 33, 47 – 51].

Inicialmente foram feitos estudos com talcos, caulins, argilas de alvenaria, argilas refratárias, vermiculitas e bentonitas. Nesta fase buscou-se definir a faixa de valores, onde as misturas pudessem ser preparadas, com relação à trabalhabilidade, ao tempo de pega e à ausência de água livre. Prepararam-se as misturas de cimento e rejeito simulado contendo de 5 a 40 % em peso de aditivo. A partir daí decidiu-se fazer um estudo mais detalhado das bentonitas, uma vez que estas apresentaram os melhores resultados [52,53,54]. Além disso, estudos realizados na Alemanha e em outros países mostraram que a bentonita apresentava-se eficiente na retenção de cério [30,33, 48 – 55].

O estudo das bentonitas nacionais como aditivo na cimentação de rejeitos radioativos iniciou-se com a realização de ensaios preliminares, através dos quais foram selecionadas as misturas cimento/rejeito/bentonita que seriam submetidas aos ensaios de lixiviação. Nestes ensaios foi determinada a faixa de trabalho para a relação água/cimento (a/c) e a quantidade máxima de bentonita que poderia ser adicionada, para a obtenção de pastas dentro dos valores estabelecidos para viscosidade (30 Pa.s) e tempos de pega (entre 1h para o início e 24 h para o fim), fornecendo produtos sólidos monolíticos, sem água livre e com resistência à compressão acima de 10 MPa.

Na prática estes valores são determinados a partir das características da instalação de cimentação, do espaço de armazenamento interno e do sistema de transporte e deposição. Como não existia na ocasião estas informações, estes valores foram estabelecidos dentro dos padrões de trabalhabilidade para o misturador de laboratório, o tempo de espera para o transporte do produto e numa resistência mecânica que fosse adequada para transporte e armazenamento.

O cério inativo foi o traçador utilizado nestes ensaios.

A resistência à lixiviação foi usada como o principal parâmetro para a seleção do produto de rejeito, embora exista uma série de características que foram também avaliadas (Tabela 2.10).

3.1 Rejeito Simulado

Uma solução foi preparada para simular o rejeito e sua composição é mostrada na Tabela 3.1 [14]. Esta solução foi baseada no rejeito de reprocessamento, que era na época um dos que apresentavam problemas para a cimentação, por causa da sua alta concentração em nitratos.

TABELA 3.1
Composição da solução simulando rejeito de médio nível de radiação [14]

REAGENTES	CONCENTRAÇÃO (g/l)
NaNO_3	450,00
NaNO_2	5,00
$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	0,10
$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	0,01
$\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	0,01
$\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	0,15
$\text{Mn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	0,02
$\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	0,20
$\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	0,03
TBP	0,30
Querosene	0,02
Oxalato de sódio	10,00
Tartarato de sódio. $2\text{H}_2\text{O}$	10,00
NaF	2,00
Detergente	2,00
$\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	0,20

3.2 Cimento

O cimento usado nos experimentos foi o Cimento Portland comum, chamado CP 320. No início da década de 80 não existia no Brasil a variedade de

cimentos que existe atualmente, além do que a normalização e controle de qualidade para a fabricação eram restritos a apenas a alguns tipos de cimento. O CP 320 foi utilizado por ser um destes e também por poder ser obtido em qualquer parte do país.

3.3 Bentonita

Para os experimentos preliminares cerca de 20 materiais foram testados. A partir destes testes iniciais, quatro bentonitas brasileira, aqui denominadas como G, F, N e B foram selecionadas para a continuação dos estudos. As características destas argilas são apresentadas nas Tabelas 3.2, 3.3 e 3.4.

TABELA 3.2
Características da bentonita G [56]

a)	<u>Composição mineralógica:</u>	-
	Argila do grupo das montmorilonitas	
b)	<u>Análise química:</u>	
	Perda ao fogo	8,00 %
	Óxido de silício (SiO_2)	60,60 %
	Óxido de alumínio (Al_2O_3)	17,70 %
	Óxido de ferro (em Fe_2O_3)	5,87 %
	Óxido de titânio (TiO_2)	1,31 %
	Óxido de cálcio (CaO)	traços
	Óxido de magnésio (MgO)	3,68 %
	Óxido de manganês (MnO)	traços
	Óxido de sódio (Na_2O)	2,55 %
	Óxido de potássio (K_2O)	0,17 %
c)	<u>Capacidade de troca de cátions:</u>	85,2 meq/100 g
d)	<u>Outras características:</u>	
	pH	8,5
	Umidade média	8,0 %
	Finura	95% 200 mesh
	Cor	Cinza

TABELA 3.3
Características da bentonita F [56]

a)	<u>Composição mineralógica:</u>		-
	Argila do grupo das montmorilonitas		
b)	<u>Análise química:</u>		
	Sílica	(SiO ₂)	60,2 %
	Alumina	(Al ₂ O ₃)	18,5 %
	Ferro	(Fe ₂ O ₃)	7,2 %
	Magnésio	(MgO)	2,0 %
	Cálcio	(CaO)	2,4 %
	Alcalinos	(Na ₂ O)	2,5 %
	Água combinada	(H ₂ O)	6,0 %
	Outros componentes	(H ₂ O)	1,2 %
c)	<u>Fórmula mineralógica calculada por análises químicas:</u>		
	$[Al_{1,44} Fe_{0,40} Mg_{0,16}] \cdot Si_4O_{10} (OH)_2 Na_{0,33}$		

Na Figura 3.1 são apresentados os difratogramas destas bentonitas. Césio estável foi usado como traçador e adicionado diretamente à pasta.

A quantidade de bentonita no produto variou de 0 a 15 % em peso. Quantidades maiores desta argila na pasta causou produtos muito porosos com baixa resistência mecânica, porque para isto foi necessária uma maior quantidade de água a fim de que se obtivesse a viscosidade requerida.

TABELA 3.4
Características das bentonitas utilizadas nos ensaios [14]

CARACTERÍSTICA	B E N T O N I T A			
	G	F	B	N
Tipo	Sódica	Cálcica	Sódica	Cálcica
Capacidade de Troca (meq/100g)	85,2	80	110	110
Densidade (g/cm ³)	0,9 - 1,0	0,9 - 1,0	0,9 - 1,0	0,9 - 1,0
Finura (mesh)	200	200	200	200
Cor	Cinza	Marrom	Acinzentada	Marrom

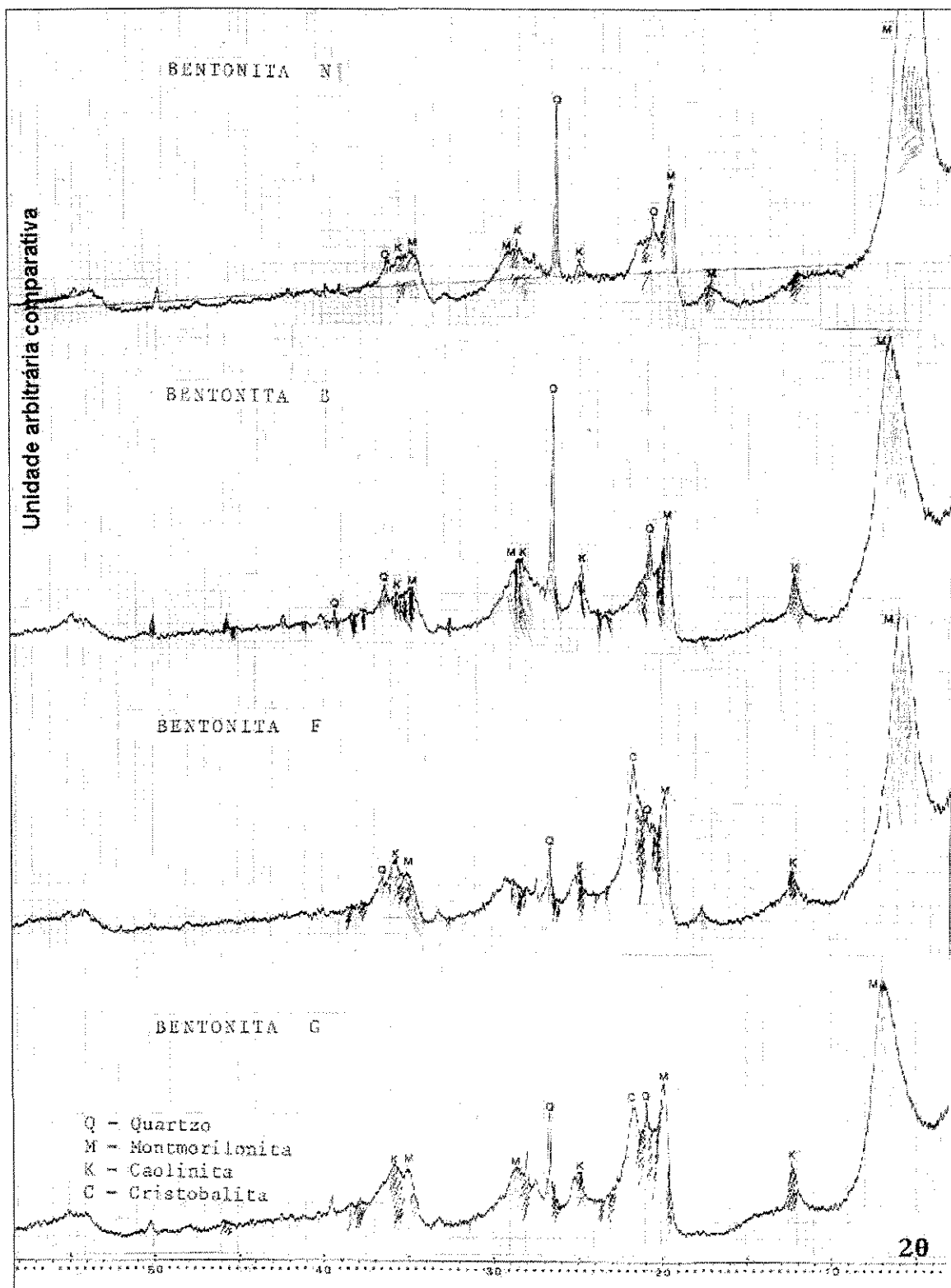


FIGURA 3.1
Difratogramas das bentonitas G, F, B e N

3.4 Confeção das Pastas e Corpos-de-Prova

As formulações selecionadas foram preparadas com um misturador manual. A quantidade de solução na mistura foi calculada de modo que o teor de sais incorporados fosse 10% em peso.

Inicialmente foram misturados o cimento e a bentonita, adicionou-se então a solução (Tabela 3.1) e homogeneizou-se por 5 minutos. Uma vez homogeneizada, parte da pasta foi retirada para os ensaios de viscosidade, tempo de pega e levantamento do perfil de temperatura durante a cura. Com a outra parte foram moldados os corpos-de-prova que foram usados para os ensaios de resistência à compressão e à lixiviação. O cério foi colocado diretamente nas pastas usadas para estas últimas amostras.

3.5 Propriedades Avaliadas

A viscosidade e o tempo de pega foram determinados na pasta. A resistência à compressão e à lixiviação foram determinadas nas amostras solidificadas.

3.5.1 Ensaio para a determinação da viscosidade

A viscosidade é a resistência que todo fluido real oferece ao movimento relativo de qualquer de suas partes e representa a medida do atrito interno entre as moléculas da pasta.

A viscosidade em pastas de cimento é determinada para a avaliação do seu grau de escoamento e de sua trabalhabilidade. Desta forma verifica-se a possibilidade desta mistura ser obtida em um determinado sistema de cimentação, gerando produtos homogêneos, sem água livre e de qualidade adequada para o manuseio, transporte e armazenamento sem riscos para o homem e para o meio ambiente.

Para esta determinação foi utilizado um viscosímetro da marca Brookfield, modelo RVT, o acessório Helipath Stand e rotores do tipo T, como mostrado na

Figura 3.2. Foram feitas 30 medidas, em 3 etapas, em 600 mL de pasta e a média das medidas foi usada para o cálculo da viscosidade em Pa.s [57].

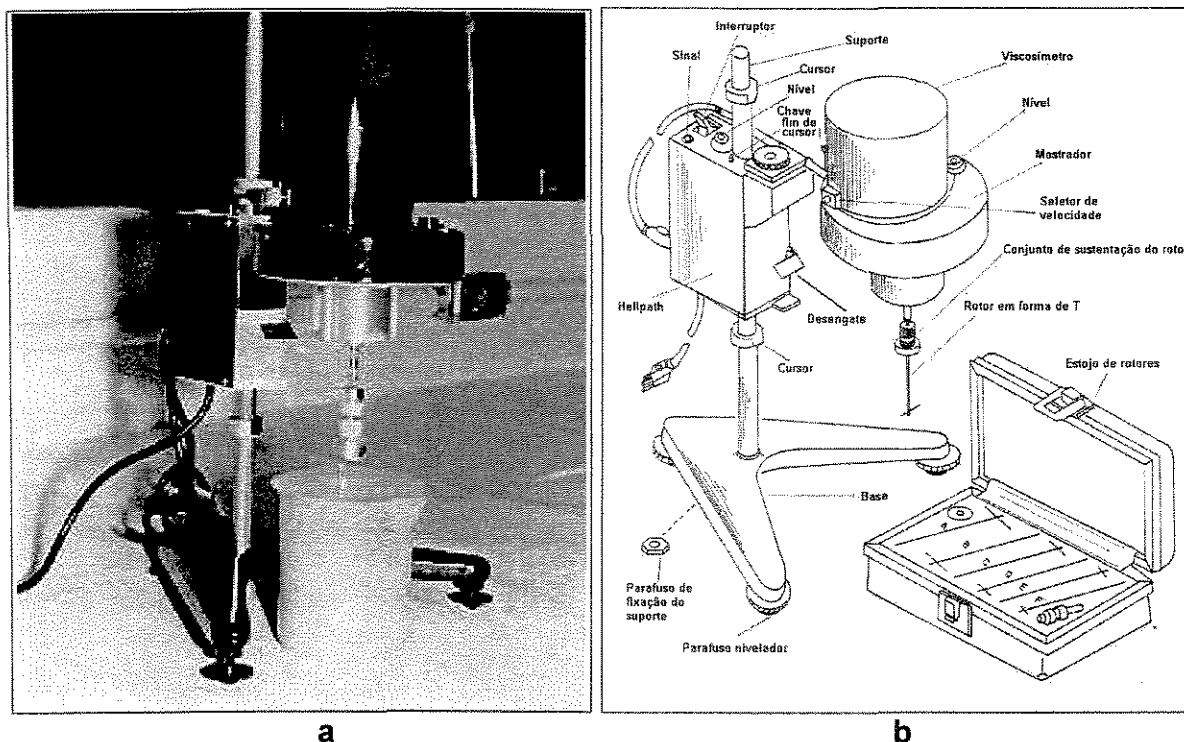


FIGURA 3.2

- a) Ensaio para a determinação de viscosidade (Viscosímetro Brookfield)**
b) Esquema do viscosímetro Brookfield

3.5.2 Ensaio para a determinação do tempo de pega

A partir do instante em que a água, presente no rejeito, entra em contato com o cimento ocorrem reações químicas, cuja consequência é um gradativo enrijecimento. Com o decorrer do tempo, a pasta continua enrijecendo até tornar-se um sólido. Neste processo existem dois pontos bastante característicos, onde ocorrem mudanças repentinas na reologia da pasta. No primeiro dá-se o início do crescimento brusco da viscosidade, o que convencionou-se chamar por tempo de início de pega. No segundo ponto, ocorre a passagem da pasta do estado plástico para o estado sólido e convencionou-se chamá-lo por tempo do fim de pega [58].

Na prática o tempo de pega é um indicativo da compatibilidade entre o rejeito e o cimento, pois caso isto não ocorra, a pasta não se solidificará. É

importante durante o processamento do rejeito para que se garanta que não haverá solidificação antes da mistura ter sido totalmente homogeneizada.

Este ensaio foi realizado com base na norma NBR 7215 [59], usando-se um aparelho de Vicat automático (Figura 3.3). Com a pasta recém-preparada encheu-se o molde apropriado para este ensaio, colocando-o em seguida na base do aparelho de Vicat. Em intervalos preestabelecidos a agulha do equipamento penetra na pasta e registra a profundidade de penetração em um gráfico. Terminado o ensaio determinaram-se através dos pontos dos gráficos o início e o fim de pega da mistura [60].

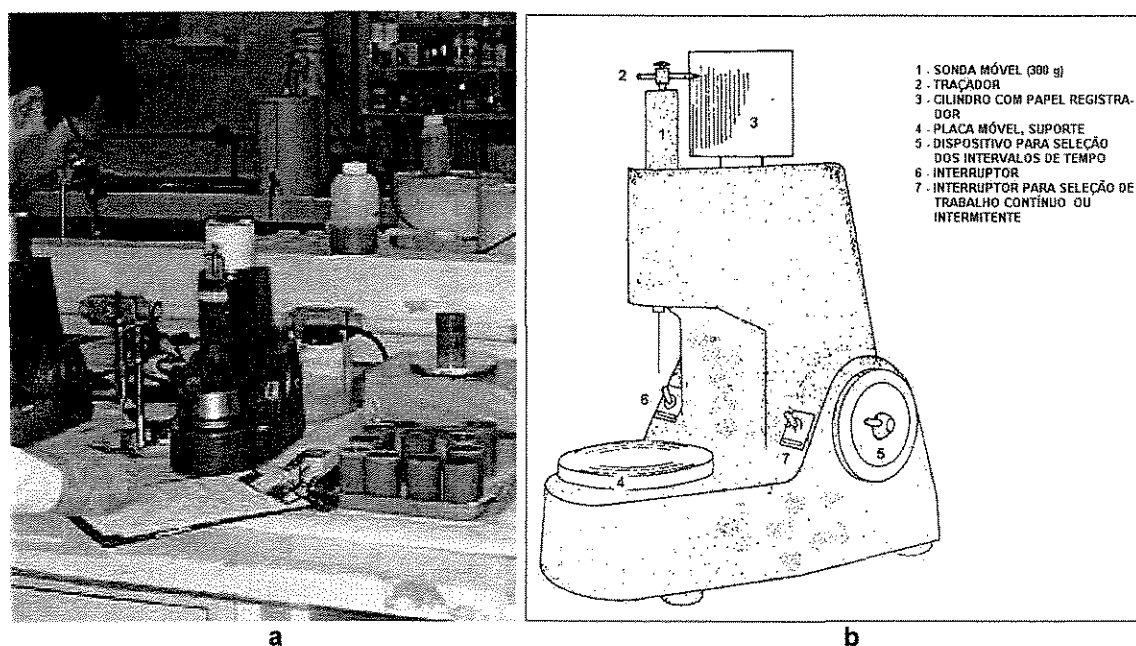


FIGURA 3.3

- a) Ensaio para a determinação do tempo de pega (Aparelho de Vicat);**
b) Esquema do Aparelho de Vicat automático

3.5.3 Ensaio para a determinação da resistência à compressão

A resistência à compressão é uma propriedade importante na determinação da qualidade do produto cimentado, principalmente para as etapas de transporte e armazenamento. É a medida da carga máxima que o produto suportará por unidade de área.

A execução deste ensaio teve como base a norma NBR 7215 [59]. Os corpos-de-prova foram moldados em frascos de polietileno de 5 cm de diâmetro

por 7 cm de altura e foram tampados. Após 28 dias de cura seca, as amostras foram retiradas dos moldes e submetidas ao ensaio de resistência em uma prensa hidráulica manual (Figura 3.4) [61, 62].

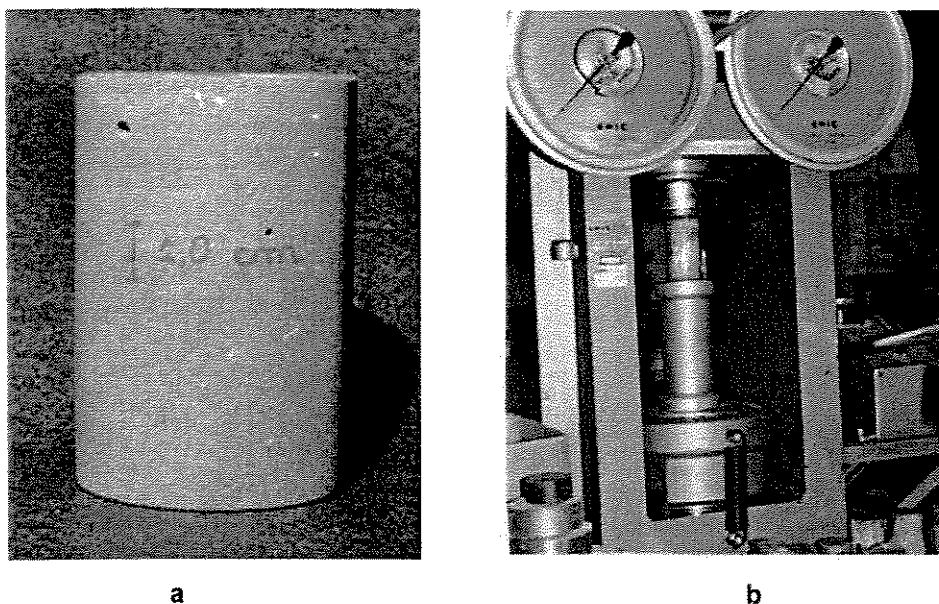


FIGURA 3.4

Ensaio para a determinação de resistência à compressão. a) Corpo-de-prova após 28 dias de cura seca sem o molde. (b) Corpo-de-prova sendo rompido

3.5.4 Ensaio para a determinação da evolução da temperatura no produto

Este ensaio foi realizado de maneira adiabática em uma montagem, como esquematizado na Figura 3.5. Um frasco contendo a pasta é colocado em um recipiente revestido com isolante térmico. Dois termopares são usados para medir as temperaturas da pasta e do sistema, as quais são registradas em um gráfico em função do tempo. A partir dos resultados deste ensaio acompanha-se a evolução das reações de pega da pasta, que são exotérmicas.

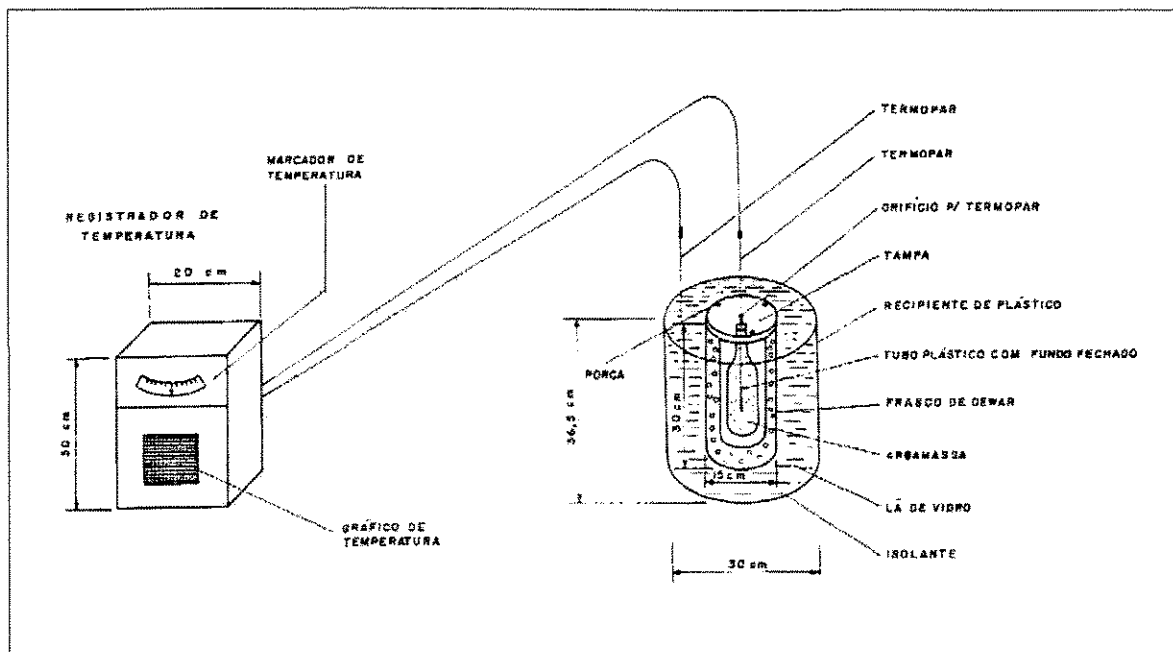


FIGURA 3.5

Esquema da montagem para a determinação da evolução da temperatura no produto cimentado

3.5.5 Ensaio para a determinação da lixiviação

As misturas de cimento, rejeito simulado e bentonita foram preparadas adicionando-se cério inativo como traçador. Dois corpos-de-prova foram moldados em frascos cilíndricos de 5 cm por 7 cm de altura e, após a cura, as amostras foram retiradas dos moldes (Figura 3.4.a), pesadas, medidas e colocadas para lixiviar em cubas de polietileno com água deionizada. Este ensaio foi realizado à temperatura ambiente (Figura 3.6).

O método usado para este ensaio foi o "Long-term leach testing of radioactive waste solidification products", recomendado pela International Standards Organization (ISO) [25]. O lixiviante, 1.500 mL de água deionizada, foi trocado completamente em intervalos diários durante os primeiros cinco dias, duas vezes na segunda semana, semanalmente nas quatro semanas seguintes e mensalmente até ter sido atingido um ano de ensaio. A determinação da

quantidade de césio presente no lixiviante foi feita através da análise por absorção atômica [14].

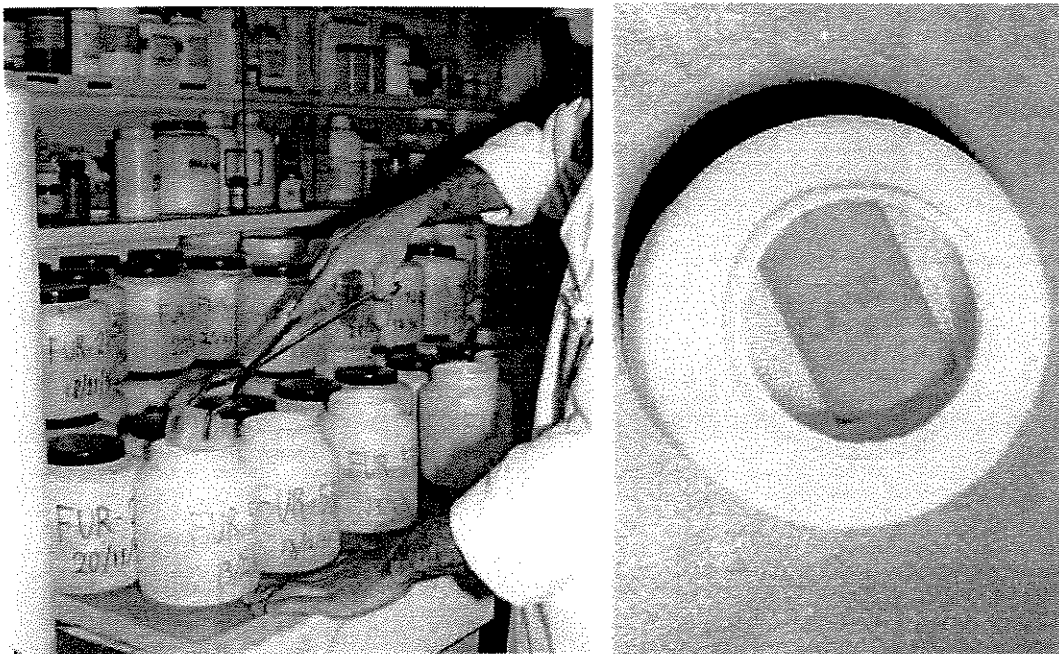


FIGURA 3.6
Ensaio de lixiviação com traçador inativo

3.5.6 Ensaio para a avaliação da capacidade de absorção de césio pelas bentonitas

Adicionalmente foram realizados ensaios para avaliar a capacidade das bentonitas para absorver césio. Inicialmente, foram confeccionados corpos-de-prova com misturas de cimento, rejeito simulado e 7% de bentonita. Foram testadas somente as bentonitas G e B, pois estas apresentaram os melhores resultados após seis meses de ensaio de lixiviação.

Após 28 dias de cura estes corpos foram triturados e a fração < 1 mm foi usada para o ensaio. Este material foi colocado em tubos de ensaio e, em seguida, foram adicionadas água deionizada e duas soluções de césio, uma inativa e outra contendo césio-137. As soluções inativas, usadas em cada tubo de ensaio, apresentavam diferentes concentrações de césio. Após alguns dias os tubos de ensaio foram agitados e centrifugados e alíquotas do sobrenadante

foram retiradas, medindo-se em um contador a quantidade de césio presente. As alíquotas retornaram aos tubos de ensaio e, em diferentes intervalos de tempo, repetiu-se a amostragem, até que a concentração de césio, na solução, se mantivesse constante dentro da faixa de erro da análise.

Outra série de amostras foi feita usando-se as bentonitas puras em lugar do produto granulado cimento/bentonita. A amostragem e medição do césio no líquido foram feitas da mesma maneira citada anteriormente.

3.6 Programa Computacional Utilizado para a Avaliação dos Resultados dos Ensaios de Lixiviação

Para a avaliação da segurança do sistema de deposição uma das etapas consiste em ajustar os dados obtidos em ensaios de lixiviação, durante um período confiável, a equações de transporte de massa e tentar extrapolar estes resultados para períodos maiores. Assim foi desenvolvido no centro de pesquisa Brookhaven National Laboratory – BNL, EUA, um programa de computador para acompanhar ensaios a curto prazo, chamado Teste de Lixiviação Acelerado (Accelerated Leach Test – ALT) [26, 63]. Através do programa ALT pode-se comparar dados experimentais e teóricos gerados por quatro modelos e que descrevem os mecanismos de liberação mais comuns. Além disto este programa calcula a fração liberada incremental (IFL – incremental fractional leaching) e a acumulada (CFL – cumulative fractional leaching) do contaminante estudado.

O programa ALT oferece algumas opções de extrapolação, as quais podem ser usadas para o cálculo da quantidade de material liberado variando-se o tamanho da amostra e o tempo. Estas extrapolações têm, porém, um caráter somente didático e não podem ser usadas para previsões a longo prazo, pois as mesmas consideram que a taxa de difusão será a mesma ao longo do tempo.

3.6.1 Fundamento teórico

Como os produtos cimentados são porosos, espera-se que a lixiviação dos radionuclídeos ocorra por difusão através destes poros, sendo este considerado normalmente o mecanismo de transporte dominante. Porém a difusividade pode ser influenciada, em maior ou menor intensidade, por outros processos, como dissolução, sorção, efeitos de superfície e corrosão [39].

Este programa tenta ligar um método de teste experimental com um grupo de modelos mecanicistas que podem ser usados para interpretar os resultados dos testes [26, 63]. O programa ALT contém quatro modelos matemáticos para serem usados de modo a representar os dados. Os mecanismos de lixiviação descritos por estes modelos são:

- Difusão através de um meio semi-infinito (para baixa fração lixiviada acumulada – CFL);
- Difusão através de cilindro finito (para alta fração lixiviada acumulada – CFL);
- Difusão mais partição do termo fonte e
- Lixiviação limitada pela solubilidade.

Dois simuladores consideram somente o mecanismo de difusão: difusão em um meio semi-infinito (um corpo em que os contornos externos estão a uma distância infinita da região interna) e difusão em um cilindro finito (um corpo limitado). Estes modelos são baseados na Lei de transporte de massa de Fick.

O chamado “modelo de partição” considera a difusão como o mecanismo de lixiviação, porém com redução do termo fonte. Isto implica dizer que a espécie de interesse está dividida em duas frações, uma lixiviável e outra não lixiviável, sendo P o fator de partição do termo fonte, que está entre 0 e 1 ($0 < P < 1$).

No simulador usado para avaliar a dissolução (modelo de dissolução) é feita uma análise estatística de todos os valores incrementais – IFL de um experimento em conjunto calculando uma média e a distribuição em torno da média. Um valor estável de IFL indica que a solubilidade controla a concentração da espécie de interesse no lixivante. Nos Anexos A e B são apresentados, respectivamente, o fundamento matemático e o glossário do programa ALT [63].

3.6.2 Estrutura do programa

Na Figura 3.7 são apresentadas as funções principais do programa ALT. Para modelos contendo o mecanismo de difusão, o programa de computador plota os dados experimentais e uma curva calculada a partir do modelo selecionado que

melhor se ajusta aos dados. Isto é feito através de um método iterativo que otimiza o ajuste para a curva integral.

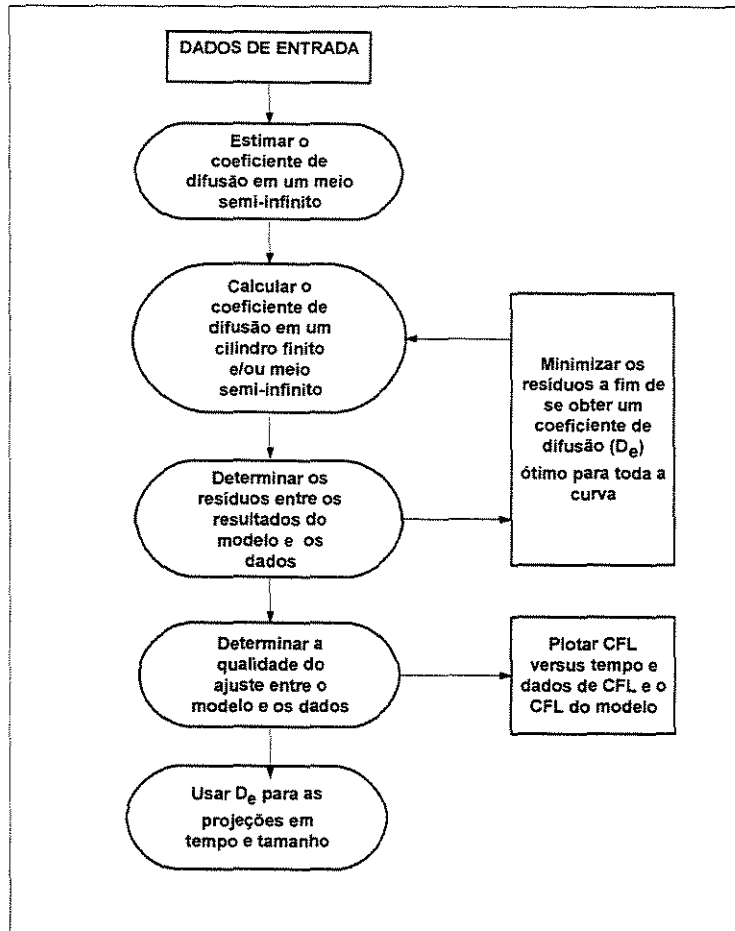


FIGURA 3.7

Fluxograma das funções principais do programa de computador para o ensaio de lixiviação acelerado (Programa ALT) [26, 63]

Estes mecanismos descritos anteriormente foram observados em estudos com vários materiais durante o desenvolvimento do método do teste [26, 63]. No programa ALT o valor E_R indica quão próxima uma curva gerada pelo modelo está sendo representada pela curva dos dados (para os modelos de difusão e partição). Este valor é a soma dos resíduos, expressa como uma porcentagem da fração acumulada (CFL) dos dados experimentais. Para o modelo de dissolução, a boa qualidade do ajuste é indicada pelo formato da distribuição em torno do valor

médio de IFL. Esta distribuição é descrita pelo desvio padrão expresso como o coeficiente de variação.

4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados e analisados os resultados obtidos nos diversos ensaios já descritos. Uma etapa preliminar reuniu os ensaios de resistência à compressão, viscosidade e tempo de pega. As misturas selecionadas nessa etapa foram, então, submetidas aos ensaios de lixiviação.

4.1 Ensaios Preliminares

Como já foi dito, nestes ensaios foi determinada a faixa de trabalho para a relação água/cimento (a/c) e a quantidade máxima de bentonita que poderia ser adicionada, para a obtenção de pastas dentro dos valores estabelecidos para viscosidade (30 Pa.s) e tempos de pega (1h e 24 h), fornecendo produtos sólidos monolíticos, sem água livre e com resistência à compressão acima de 10 MPa.

Na Tabela 4.1 são mostrados os resultados dos ensaios preliminares de resistência à compressão, através dos quais escolheu-se a faixa de trabalho em termos da relação água/cimento (a/c). Estes resultados referem-se à adição de 10% em peso de bentonita no produto. Eles indicaram que se poderia trabalhar em uma ampla faixa de a/c (0,30 a 0,70), pois os produtos obtidos apresentaram resistência acima do valor mínimo estabelecido para a pesquisa, ou seja, maior do que 10 MPa.

TABELA 4.1

Resistência à compressão de corpos-de-prova de cimento (CP 320, 10% de bentonita e 10% de sais incorporados)

RELAÇÃO a/c	RESISTÊNCIA À COMPRESSÃO (MPa)
0,31	25,3
0,35	25,6
0,41	27,0
0,45	18,3
0,51	20,3
0,55	14,9
0,61	15,8
0,65	11,1
0,69	12,2

Os resultados obtidos nos ensaios de viscosidade foram locados “versus” a relação água/cimento (a/c) em gráficos como o da Figura 4.1 e esses gráficos foram utilizados na escolha das misturas com viscosidade igual a 30 Pa.s. Pode ser observado que, à medida que o teor de bentonita foi aumentado, a relação a/c para obter-se esta viscosidade foi cada vez maior. Isto pode ser explicado pelo fato de que uma quantidade de cimento necessita de uma determinada quantidade de água para reagir e quando se adicionou a bentonita ela absorveu parte desta água de reação, tendo sido, portanto, necessária uma quantidade adicional de água para que a mistura fosse trabalhável.

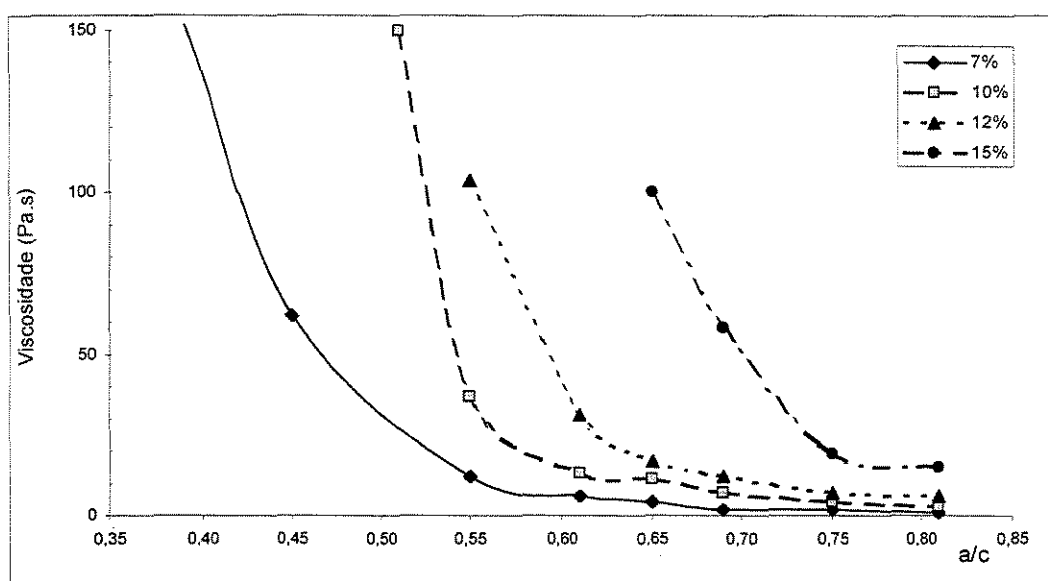


FIGURA 4.1

Viscosidade de diversas pastas de cimento, bentonita B e rejeito simulado (10% em peso de sais incorporados)

A partir do parâmetro viscosidade selecionaram-se as misturas para o ensaio de lixiviação. Na Tabela 4.2 são mostrados os resultados do ensaio de tempo de pega para estas misturas. Para todas elas, o tempo de pega esteve dentro dos critérios estabelecidos, exceto quando se utilizaram 15% de bentonita N no produto. Neste caso, o tempo de pega foi maior que 24 horas, portanto esta mistura foi eliminada para os ensaios seguintes.

TABELA 4.2

Resultados dos ensaios de tempo de pega em pastas de cimento, bentonita e rejeito simulado, contendo 10% de sais incorporados (pasta com viscosidade de 30 Pa.s)

BENTONITA	TEOR DE BENTONITA (%)	RELAÇÃO a/c	TEMPO DE PEGA (h)
G	7	0,56	6,00
	10	0,62	10,00
	12	0,68	6,00
	15	0,81	10,00
F	7	0,51	6,75
	10	0,60	18,25
	12	0,68	10,25
	15	0,83	9,50
N	7	0,48	3,50
	10	0,58	19,75
	12	0,64	20,00
	15	0,78	>24,00
B	7	0,49	1,00
	10	0,56	4,75
	12	0,61	11,50

Dos resultados obtidos nos testes preliminares foram selecionadas as misturas para uma nova etapa de ensaios. A Tabela 4.3 apresenta as misturas selecionadas e os resultados dos ensaios de resistência à compressão por elas apresentados.

TABELA 4.3

Resistência à compressão das misturas selecionadas para os ensaios de lixiviação (10% de sais incorporados)

BENTONITA	MISTURA	TEOR DE BENTONITA (%)	RELAÇÃO a/c	RESISTÊNCIA À COMPRESSÃO (MPa)
—*	B	0	0,35	14,2
G	G7	7	0,56	17,2
	G10	10	0,62	21,0
	G12	12	0,68	25,2
	G15	15	0,81	18,9
F	F7	7	0,51	22,9
	F10	10	0,60	21,0
	F12	12	0,68	20,1
	F15	15	0,83	20,0
N	N7	7	0,48	15,1
	N10	10	0,58	14,4
	N12	12	0,64	10,9
B	B7	7	0,49	10,9
	B10	10	0,56	18,5
	B12	12	0,61	14,3

* A mistura B não contém bentonita em sua formulação – referência.

4.2 Ensaio para a Determinação da Evolução da Temperatura no Produto

Nas Figuras 4.2 e 4.3 é mostrada a evolução da temperatura durante a cura de diversas misturas contendo cimento. Na Figura 4.2 são apresentados os resultados para as misturas contendo as quantidades mínima e máxima de bentonita adicionada ao produto cimento/rejeito nesta pesquisa. A Figura 4.3 é o resumo de trabalhos realizados no FZK – Forschungszentrum Karlsruhe (antigo KFK – Kernforschungszentrum Karlsruhe), na Alemanha.

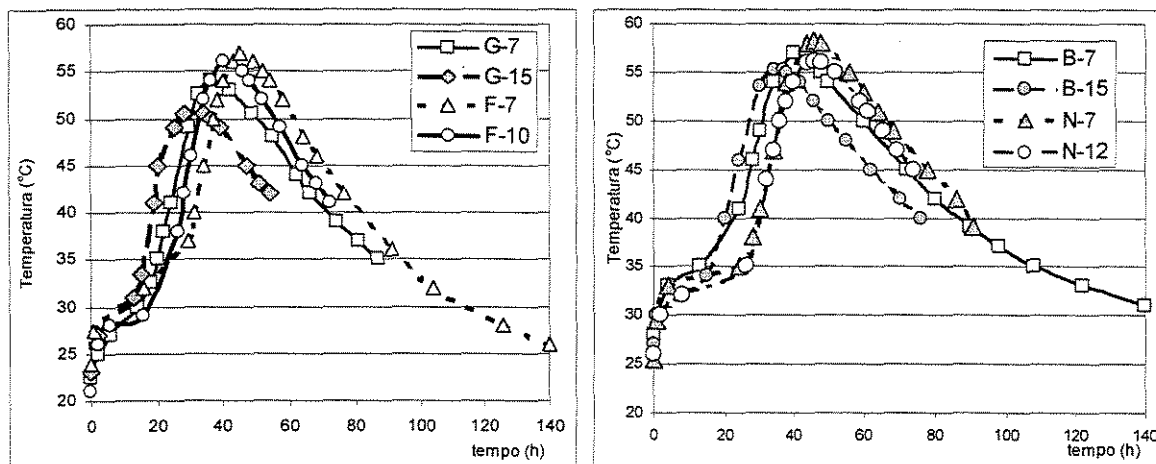


FIGURA 4.2

Perfil da temperatura durante a pega do produto cimentado com bentonita

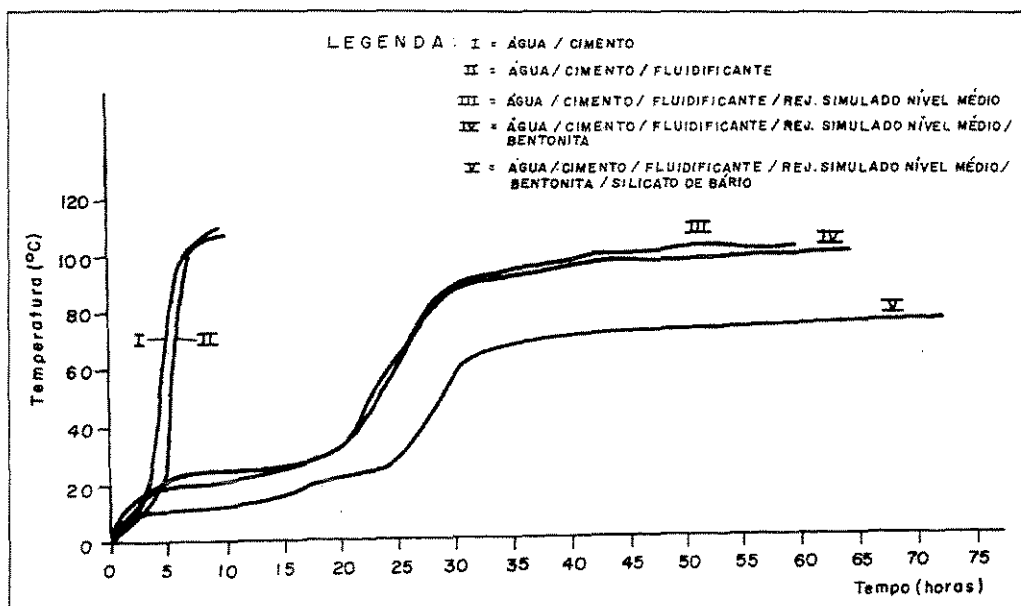


FIGURA 4.3

Perfil da temperatura para produtos de cimento - ensaios no FZK [64]

Observa-se que as oito misturas contendo as bentonitas nacionais apresentaram comportamento semelhante, sendo que as temperaturas máximas estiveram entre 50°C e 60°C e o tempo necessário para que estas fossem alcançadas, entre 30 e 45 horas. Comparando-se com a Figura 4.3 verifica-se que essas temperaturas são menores que as alcançadas nos ensaios realizados com bentonita no FZK, em torno de 70 °C. Poder-se-ia explicar tal comportamento pelo

tipo de cimento utilizado, que, no caso do FZK, foi o de alta resistência inicial [64]. Este cimento tem como propriedade principal a aceleração das reações de hidratação, o que fornece um alto calor de hidratação no início do processo de cura, o qual, pelas condições do teste, é refletido num aumento da temperatura.

O menor gradiente de temperatura tende a melhorar a qualidade do produto solidificado, mas ele tem que ser alto o suficiente para que a solidificação ocorra. Realmente, a inspeção visual mostrou a inexistência de trincas e fissuras nas amostras.

4.3 Ensaio para a Avaliação da Capacidade de Absorção das Bentonitas

Para se verificar a capacidade de absorção de cézio pela bentonita pura (1g de argila) e misturada com cimento e rejeito (5g de produto com 7% em peso de bentonita) foram realizados ensaios com as bentonita G e B (3.5.6). Os resultados destes ensaios são mostrados na Tabela 4.4.

A partir destes resultados pôde-se observar que as duas bentonitas, B e G, quando puras absorveram quase todo o cézio adicionado à solução. Quando elas estavam misturadas com o cimento sua capacidade de absorção foi reduzida como é apresentado na Figura 4.4.

Uma razão para esta diferença pode ser a competição existente entre alguns cátions presentes no cimento e o cézio, em relação às posições de troca da bentonita. Outra explicação seria a diferença entre a massa da bentonita nos dois experimentos, maior quantidade no experimento com bentonita pura do que no experimento com produto (fator de 2,85). Entretanto esta redução parece depender mais da mistura cimento/rejeito/bentonita do que da massa da bentonita, como é visto na Figura 4.5, onde plotou-se a absorção do Cs pela bentonita pura “versus” a absorção do Cs pelo produto.

TABELA 4.4

Quantidade de céσιο absorvido pela bentonita pura e pelo produto bentonita e cimento em contato com água deionizada

MATRIZ	QUANTIDADE DE CÉSIO			
	ADICIONADO		A B S O R V I D O	
	(g)		(g)	(%)
Bentonita G pura ¹	1,4	E-2	1,36 E-2	97,4
	1,4	E-3	1,37 E-3	98,2
	1,4	E-4	1,38 E-4	98,5
	1,4	E-5	1,39 E-5	99,2
	1,4	E-6	1,40 E-6	99,7
Bentonita G + Cimento ²	1,3	E-2	1,20 E-3	9,0
	1,3	E-3	2,40 E-4	18,8
	1,3	E-4	3,44 E-5	26,5
	1,4	E-5	6,47 E-6	46,2
	1,0	E-6	6,15 E-7	61,5
Bentonita B Pura ¹	1,4	E-2	1,36 E-2	96,8
	1,4	E-3	1,38 E-3	98,6
	1,4	E-4	1,39 E-4	99,0
	1,4	E-5	1,39 E-5	99,2
	1,4	E-6	1,40 E-6	99,9
Bentonita B + Cimento ²	1,3	E-2	1,50 E-3	11,5
	1,3	E-3	3,51 E-4	37,0
	1,3	E-4	4,10 E-5	31,5
	1,4	E-5	5,74 E-6	41,0
	1,0	E-6	5,74 E-7	57,4

¹ Ensaios com 1 g de bentonita; ² Ensaios com 5 g de produto cimentado e 7% de bentonita.

As equações para as curvas modeladas são:

$$M_{PG} = 0,0473 \cdot (M_G)^{0,8176} \text{ com } r^2 = 0,996 \quad (4.1)$$

e

$$M_{PB} = 0,0807 \cdot (M_B)^{0,8646} \text{ com } r^2 = 0,995 \quad (4.2)$$

Onde:

M_{PG} = massa do Cs absorvido pelo produto contendo bentonita G;

M_G = massa do Cs absorvido pela bentonita G pura;

M_{PB} = massa do Cs absorvido pelo produto contendo bentonita B;

M_B = massa do Cs absorvido pela bentonita B pura e

r^2 = coeficiente de correlação.

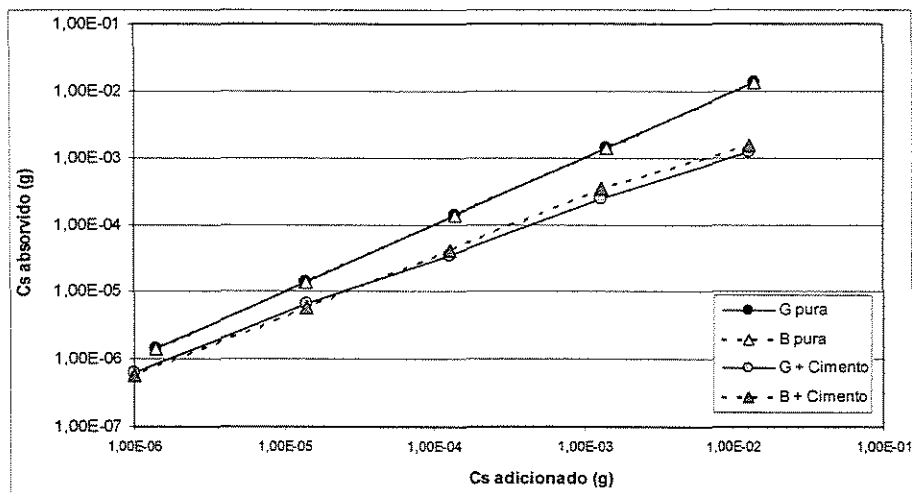


FIGURA 4.4

Quantidade de céσιο absorvido pela bentonita pura e pelo produto de cimento/rejeito/bentonita (G e B) em relação ao céσιο adicionado
 (Ensaio com 1 g de bentonita pura e com 5 g de produto cimentado contendo 7% de bentonita).

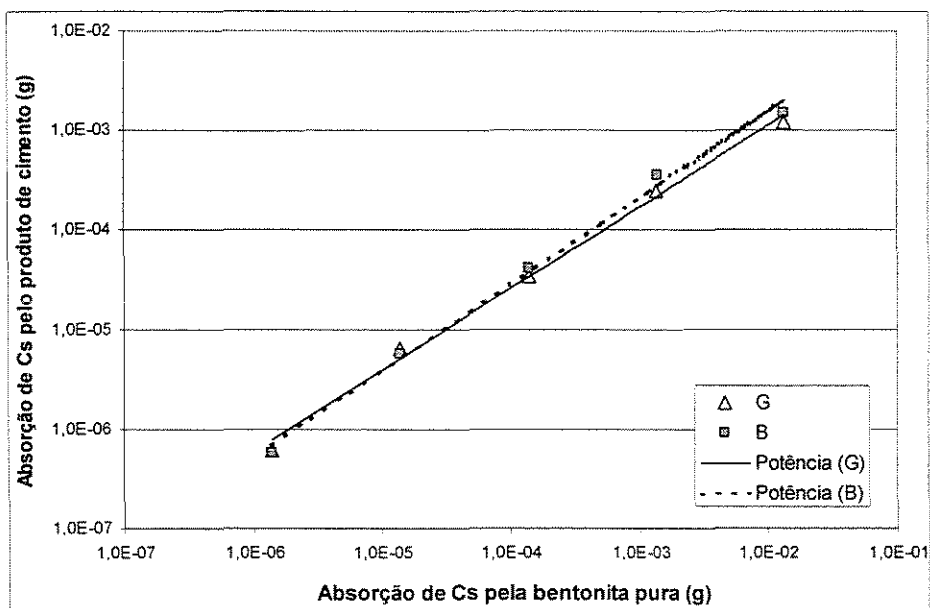


FIGURA 4.5

Comparação entre a quantidade de céσιο absorvido pela bentonita pura e pelo produto de cimento/rejeito/bentonita (G e B)

4.4 Ensaio de Lixiviação com Traçador Inativo

Este ensaio, como já foi dito, foi realizado, segundo o método sugerido pela ISO [25], em todas as amostras selecionadas nos ensaios preliminares.

Na segunda semana de execução do ensaio, as amostras que continham 12 e 15% de bentonita F não resistiram à ação da água e romperam-se. Uma possível explicação seria a quantidade adicionada de bentonita, ela pode ter sido maior do que o limite de carga para esta argila e é possível que a pressão de inchamento tenha causado a formação de rachaduras internas, o que finalmente levou à ruptura das amostras. Portanto estas amostras foram eliminadas.

As informações sobre as misturas e amostras são registradas em protocolos de acompanhamento do ensaio de lixiviação, como o apresentado na Figura 4.6. No Anexo C encontram-se os protocolos de todas as amostras e os resultados do ensaio de lixiviação.

A partir destes resultados foram calculadas as quantidades relativas de céσιο lixiviado a partir das diferentes amostras, em função do tempo, que são apresentadas nas Figuras 4.7 e 4.8, normalizadas pelo fator de forma da amostra V/S (volume pela área da superfície exposta).

As taxas de lixiviação (TDL) do céσιο foram calculadas pela equação 4.3 [25]

$$TDL = \frac{a_n}{[A_o] \cdot S \cdot t_n \cdot \rho}, \quad (4.3)$$

onde:

TDL = taxa de lixiviação (m/s),

a_n = massa do constituinte lixiviado durante cada intervalo de lixiviação (kg),

$[A_o]$ = concentração do constituinte inicialmente presente na amostra (fração em massa),

A_o = massa do constituinte inicialmente presente na amostra (kg),

S = área superficial exposta da amostra (m^2),

t_n = duração de cada período de renovação do lixivante (s),

ρ = densidade da amostra (kg/m^3),

e locados “versus” t , que é o tempo de lixiviação acumulado (Figuras 4.9 e 4.10).

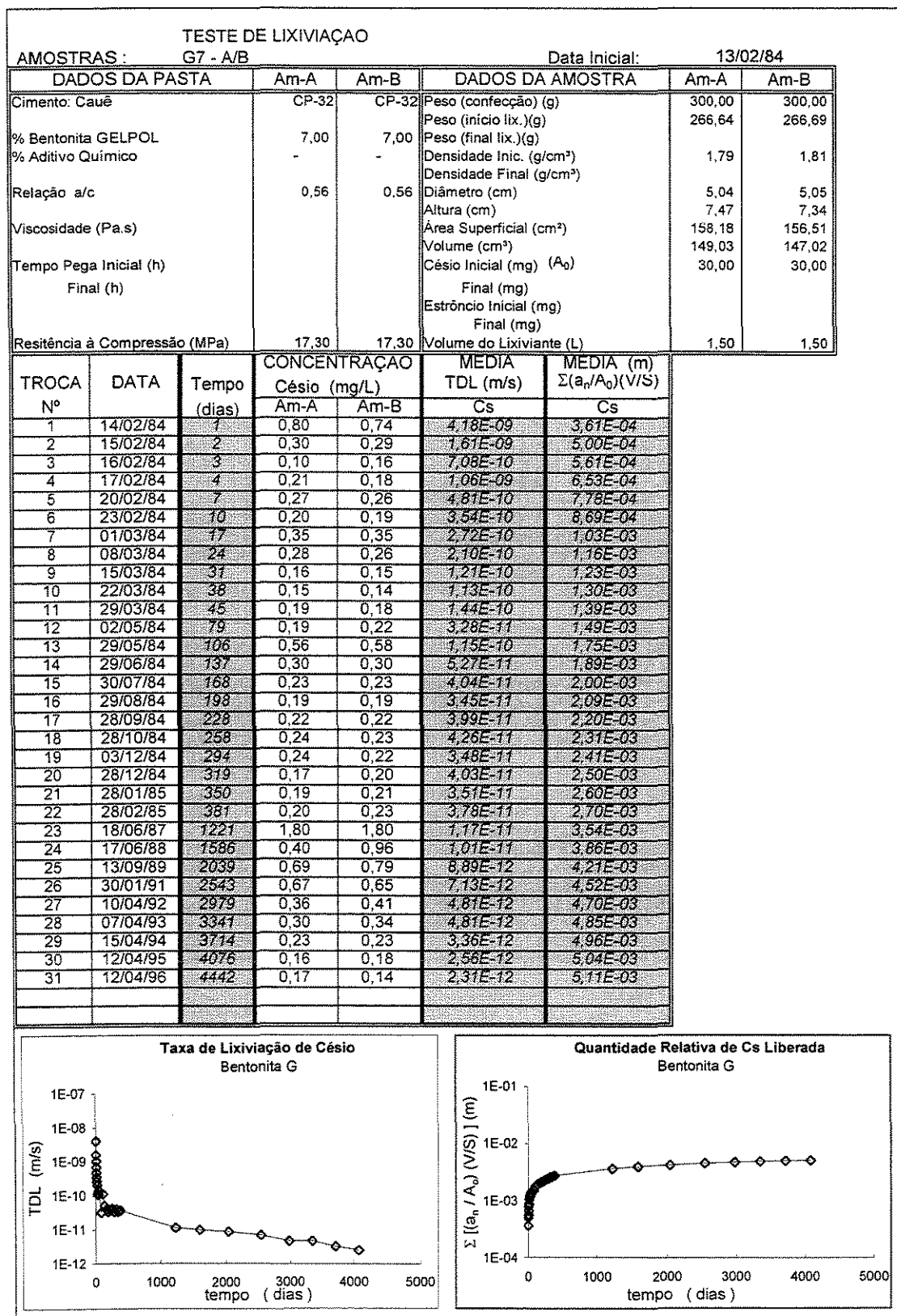


FIGURA 4.6
Protocolo para acompanhamento do ensaio de lixiviação

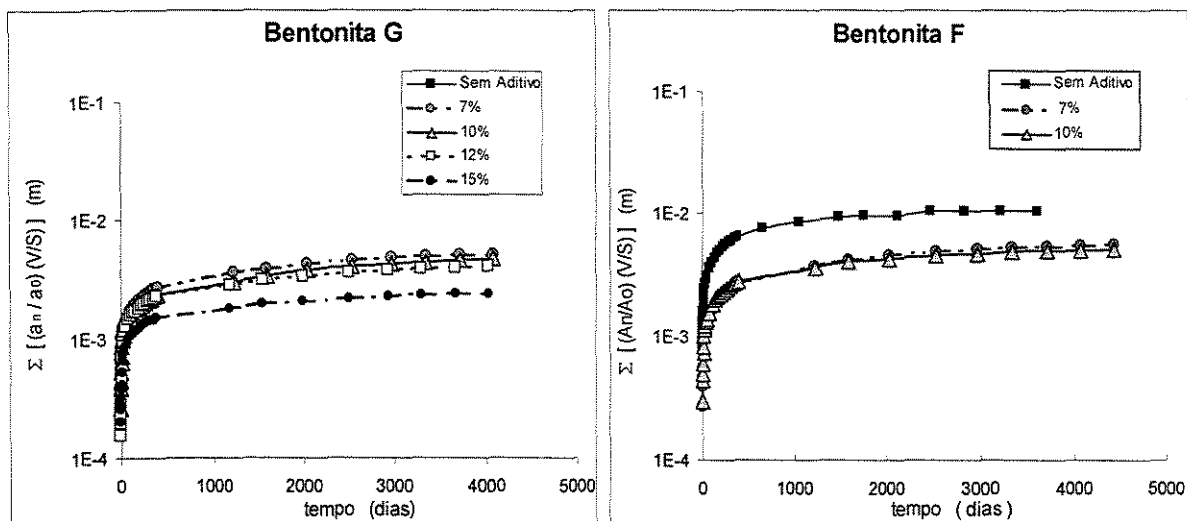


FIGURA 4.7

Quantidade relativa de césio liberado em função do tempo. (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita G ou F)

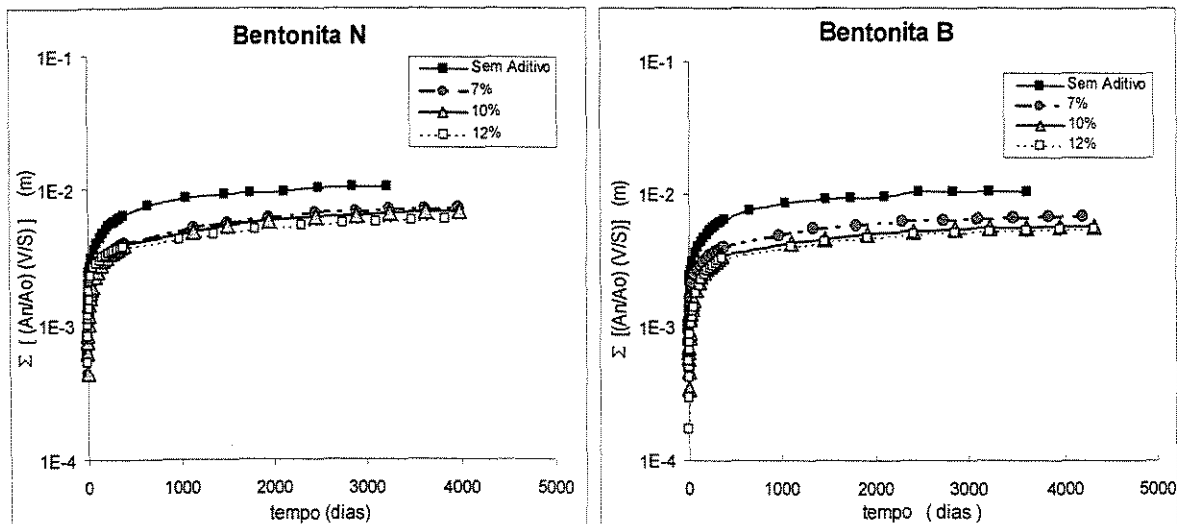


FIGURA 4.8

Quantidade relativa de césio liberado em função do tempo. (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita N ou B)

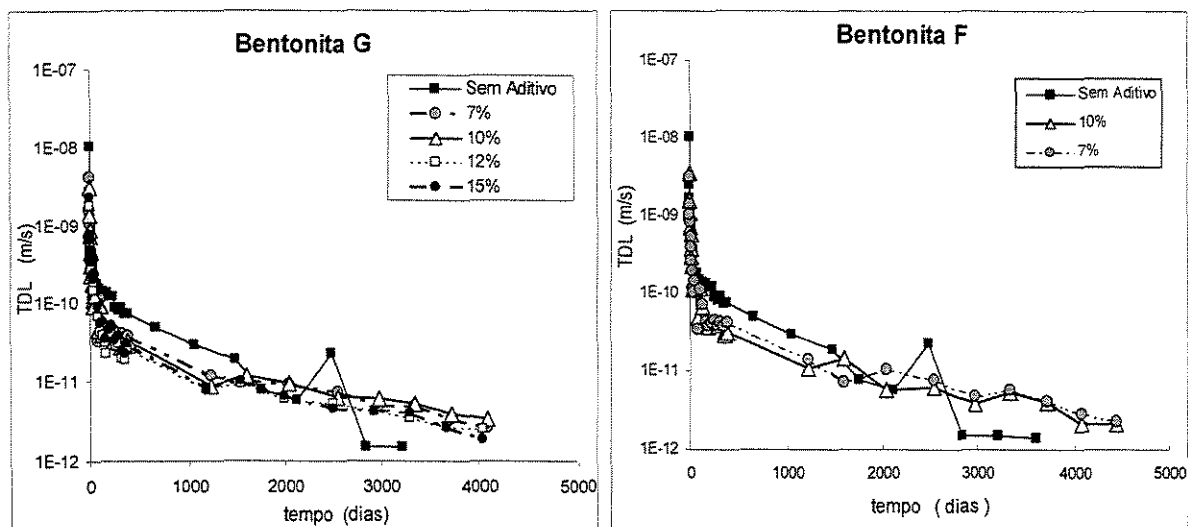


FIGURA 4.9

Taxa de lixiviação de césio inativo “versus” tempo. (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita G ou F)

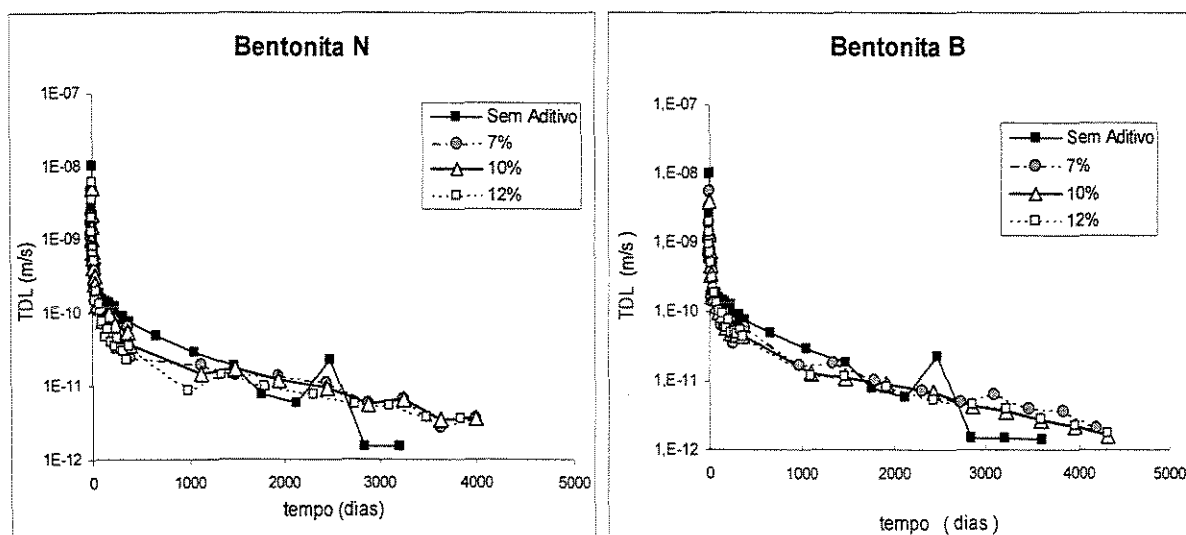


FIGURA 4.10

Taxa de lixiviação de césio Inativo “versus” tempo. (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita N ou B)

A partir destes gráficos e de acordo com as recomendações da norma ISO foram calculadas as TDLs destas misturas para um ano, que são apresentadas na Tabela 4.5 e Figura 4.11.

TABELA 4.5

Taxas de lixiviação calculadas segundo o método ISO para os ensaios de lixiviação a temperatura ambiente (1 ano de experimentos)

BENTONITA	MISTURA	% DE BENTONITA	TDL (m/s)
-	B	-	8,1 E-11
G	G7	7	4,3 E-11
	G10	10	3,6 E-11
	G12	12	2,7 E-11
	G15	15	3,0 E-11
F	F7	7	4,3 E-11
	F10	10	4,2 E-11
N	N7	7	4,9 E-11
	N10	10	4,6 E-11
	N12	12	3,5 E-11
B	B7	7	4,4 E-11
	B10	10	5,3 E-11
	B12	12	5,3 E-11

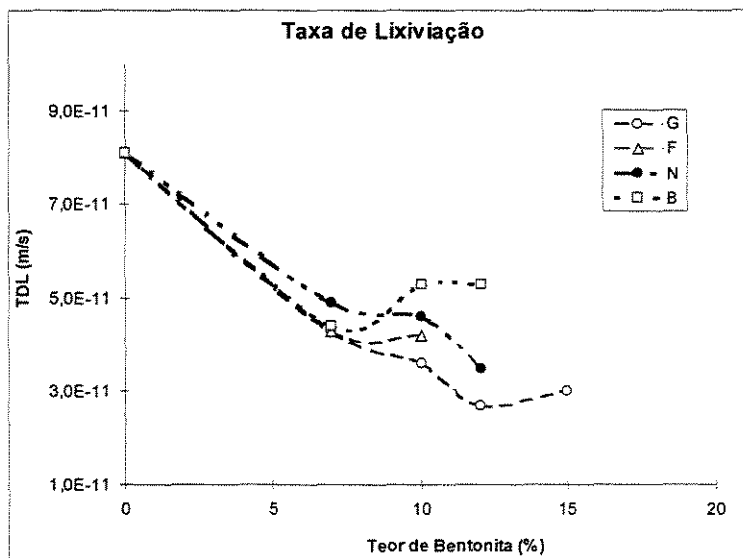


FIGURA 4.11

Taxa de lixiviação de cézio inativo “versus” quantidade de bentonita adicionada. (Ensaio de lixiviação ISO; 1 ano de experimentos; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita)

Pelos resultados, observa-se que a adição de bentonita, em qualquer quantidade, fez decrescer a liberação de céσιο. As misturas que apresentaram os melhores resultados com menores TDLs, ou seja, retiveram a maior quantidade de céσιο, foram aquelas que continham 12 e 15% de bentonita G. Porém todos os resultados apresentaram-se na mesma ordem de grandeza, podendo-se dizer que, nas condições deste ensaio, o comportamento das quatro bentonitas, em relação à retenção de céσιο, foi semelhante.

Uma dificuldade, que se apresenta neste tipo de ensaio, é a análise do céσιο inativo nos estágios finais de troca de lixiviante, onde a concentração de traçador é muito baixa, diminuindo a precisão dos resultados.

Na análise de céσιο pelo método de absorção atômica o desvio é de 20 a 50% para concentrações entre 0,05 a 0,10 mg/l, de 10 a 20% entre 0,10 e 1,0 mg/l e para concentrações acima de 1,0 mg/l o desvio é de, no máximo 10% [65].

Comparando-se as quantidades relativas de céσιο lixiviadas no final de um ano de ensaio (Tabela 4.6), observa-se que enquanto somente cerca de 32% do céσιο é retido nas amostras sem aditivo, 58 a 76% deste elemento pode ser mantido na matriz com a adição da bentonita. Além disto, nota-se, também, que o aumento da quantidade de bentonita no produto fez diminuir a quantidade de céσιο lixiviado, exceto no caso da adição de 15% de bentonita G. Isto poderia ser explicado pelo aumento da relação a/c (0,83), o que tenderia a formar um produto mais poroso, facilitando, desta forma, a liberação do céσιο durante o ensaio de lixiviação.

Habayeb [66] em seu estudo de matrizes para a cimentação de diferentes rejeitos também conseguiu resultados positivos na retenção de céσιο quando a bentonita foi utilizada, como apresentado na Tabela 4.7. Verifica-se que as matrizes contendo esta argila reduziu a liberação do céσιο de 51% para 3%, no melhor caso (94% de efetividade), e de 86% para 29%, no pior caso (66%).

TABELA 4.6

Quantidade relativa de céσιο inativo liberado após um ano de lixiviação em água deionizada (CP32, rejeito simulado, 10% de sais incorporados, temperatura ambiente, norma ISO)

BENTONITA	QUANTIDADE DE BENTONITA ADICIONADA (%)	QUANTIDADE DE CÉSIO TOTAL LIXIVIADO (%)
-	-	67,6
G	7	28,6
	10	24,3
	12	23,7
	15	28,9
F	7	30,5
	10	28,6
N	7	42,4
	10	41,7
	12	40,1
B	7	42,4
	10	36,3
	12	36,4

TABELA 4.7

Comparação entre as frações lixiviadas acumuladas de ^{134}Cs de rejeitos de descontaminação cimentados após 80 dias de ensaio [66]

REJEITO DE DESCONTAMINAÇÃO	M A T R I Z					
	C I M E N T O P O R T L A N D			C I M E N T O P O R T L A N D + B E N T O N I T A		
	$(\Sigma a_r/A_o) (V/S)$		$(\Sigma a_r/A_o).100$	$(\Sigma a_r/A_o) (V/S)$		$(\Sigma a_r/A_o).100$
	(cm)	(m)		(cm)	(m)	
Peróxido Bicarbonato	0,383	3,83E-3	51,37	0,0233	2,33E-4	3,06
Permanganato alcalino	0,343	3,43 E-3	46,04	0,0236	2,36 E-4	3,04
Turco 4521 ^A	0,395	3,95 E-3	54,12	0,0644	6,44 E-4	8,37
Persulfato de Potássio	0,676	6,76 E-3	81,07	0,152	1,52 E-3	17,92
Turco 4512	0,705	7,05 E-3	86,47	0,240	2,40 E-3	28,95

Para o estudo dos resultados em dez anos de ensaios de lixiviação calcularam-se dois parâmetros: a fração lixiviada incremental (IFL – incremental

fraction leached) e a fração lixiviada acumulada (CFL – cumulative fraction leached) [26, 63].

A IFL é calculada pela seguinte equação:

$$IFL = \frac{{}_i a_n}{{}_i A_0} \quad (4.4)$$

onde:

${}_i a_n$ = quantidade da espécie i observada no lixiviante em um dado intervalo de tempo;

${}_i A_0$ = o termo fonte, a quantidade original total da espécie lixiviada contida na amostra no início do ensaio.

A CFL é a soma das frações de uma espécie de interesse lixiviada durante o ensaio e é calculada como:

$$CFL = \frac{\sum {}_i a_n}{{}_i A_0} \quad (4.5)$$

onde:

$\sum {}_i a_n$ = soma das quantidades da espécie i lixiviadas em um dado intervalo de tempo durante o ensaio;

${}_i A_0$ = o termo fonte, a quantidade original total da espécie lixiviada contida na amostra no início do ensaio.

Nas Figuras 4.12 e 4.13 são mostrados os resultados destes cálculos para a bentonita G e a mistura sem argila. Pode-se notar que o uso da bentonita reduziu a liberação do cézio também a médio prazo (10 anos). Por exemplo com o uso de 12% da bentonita G na mistura houve uma redução de 60% na liberação do cézio em relação à mistura sem a argila, onde todo o traçador foi liberado.

Quanto à forma de liberação do cézio, verifica-se que ela foi maior nas primeiras trocas, tornando-se lenta e constante para as últimas trocas (Figura 4.6 e Anexo C). A maior liberação nas primeiras trocas pode ser atribuída, de acordo

com alguns pesquisadores, a um efeito de lavagem do césio que se encontra na superfície [46, 66, 67, 68].

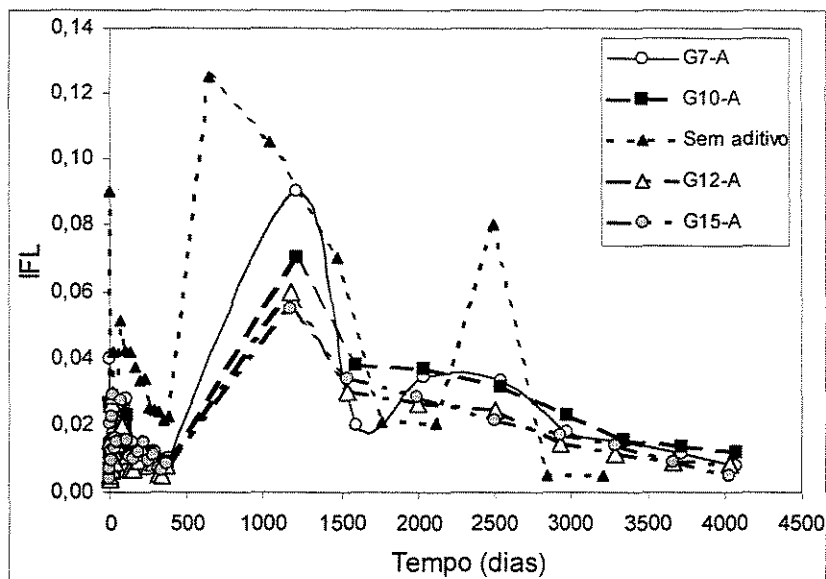


FIGURA 4.12

Fração lixiviada incremental de césio para as misturas com bentonita G (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita)

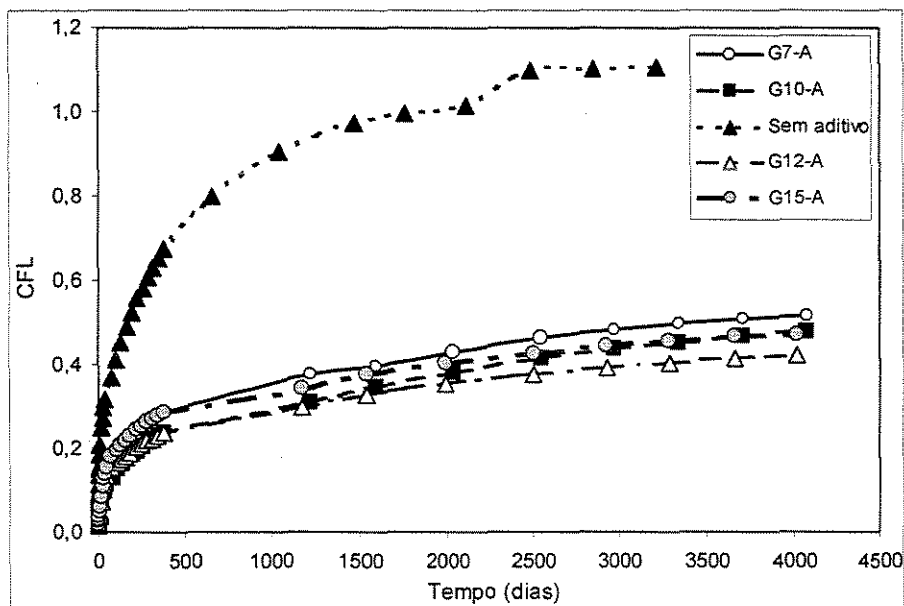


FIGURA 4.13

Fração lixiviada acumulada de césio para as misturas com bentonita G (Ensaio de lixiviação ISO; produtos de cimento, rejeito simulado e bentonita)

Adicionalmente calculou-se a TDL para 10 anos de ensaio conforme mostrado na Tabela 4.8.

TABELA 4.8

Taxas de lixiviação calculadas segundo o método ISO para os ensaios de lixiviação à temperatura ambiente após 10 anos de experimentos

BENTONITA	MISTURA	% DE BENTONITA	TDL (m/s)
-	B	-	1,7 E-11
G	G7	7	3,6 E-12
	G10	10	4,9 E-12
	G12	12	3,6 E-12
	G15	15	3,4 E-12
F	F7	7	3,9 E-12
	F10	10	3,5 E-12
N	N7	7	4,7 E-12
	N10	10	4,8 E-12
	N12	12	4,6 E-12
B	B7	7	4,1 E-12
	B10	10	2,8 E-12
	B12	12	3,0 E-12

4.5 Análise dos Resultados de Lixiviação Através do Programa ALT

Como já foi relatado anteriormente, a lixiviação é um fenômeno complexo podendo ser descrita por um ou uma combinação de diversos mecanismos de transferência de massa. Buscando descrever o mecanismo ou mecanismos de liberação do césio a partir das amostras contendo as bentonitas nacionais, os resultados obtidos durante dez anos de ensaio de lixiviação foram processados usando o programa ALT.

O modelo contém o “default” para os tempos predeterminados pelo ensaio de lixiviação acelerada descrito pela norma da ASTM C 1308 [26], porém existe a

possibilidade de se trabalhar com diferentes intervalos de tempo e tempos mais longos.

No Anexo D são apresentados os resultados calculados pelo programa para os 30 dados obtidos em 10 anos de ensaios. Destes resultados foram gerados três gráficos: um para o modelo de difusão, um para o modelo de dissolução e outro para o modelo de partição. Nas Figuras 4.14, 4.15 e 4.16 é mostrada a modelagem dos dados da mistura G-12 para os três modelos. Na Figura 4.14 é mostrada a curva modelada para o mecanismo de difusão e verifica-se que não houve um bom ajuste ($E_r = 39,42\%$). A curva apresentada na Figura 4.15 inclui o mecanismo de difusão mais partição, com a constante de partição igual a 0,40, e um bom ajuste ($E_r = 5,71\%$). O modelo de dissolução para os mesmos dados é apresentado na Figura 4.16; para que o ajuste fosse bom os pontos deveriam estar próximos da reta que representa a IFL média.

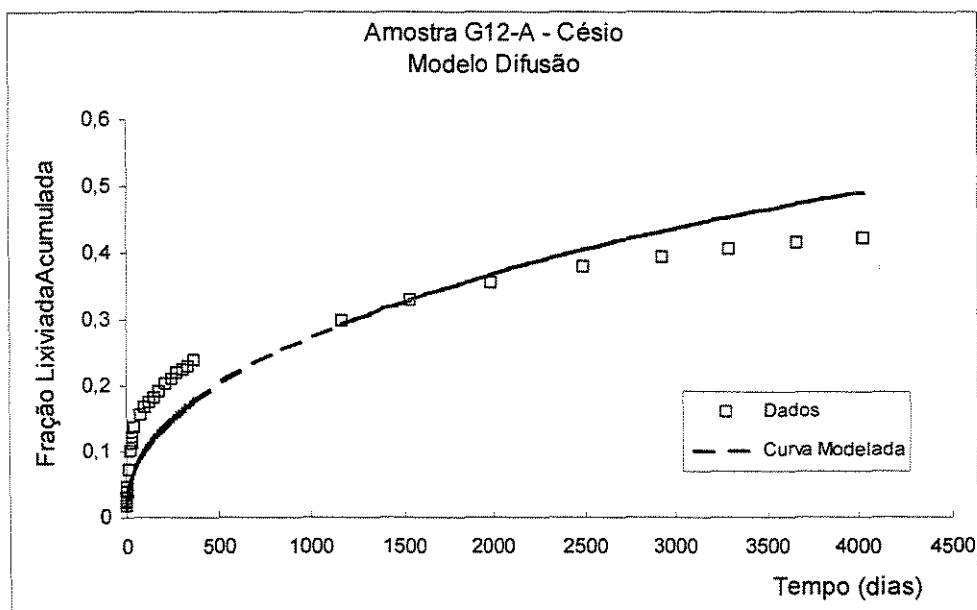


FIGURA 4.14

Fração lixiviada acumulada em função do tempo e a curva modelada para o modelo de difusão para a amostra G12-A ($D_e = 6,85 \text{ E-}10 \text{ cm}^2/\text{s}$ e $E_r = 39,42\%$)

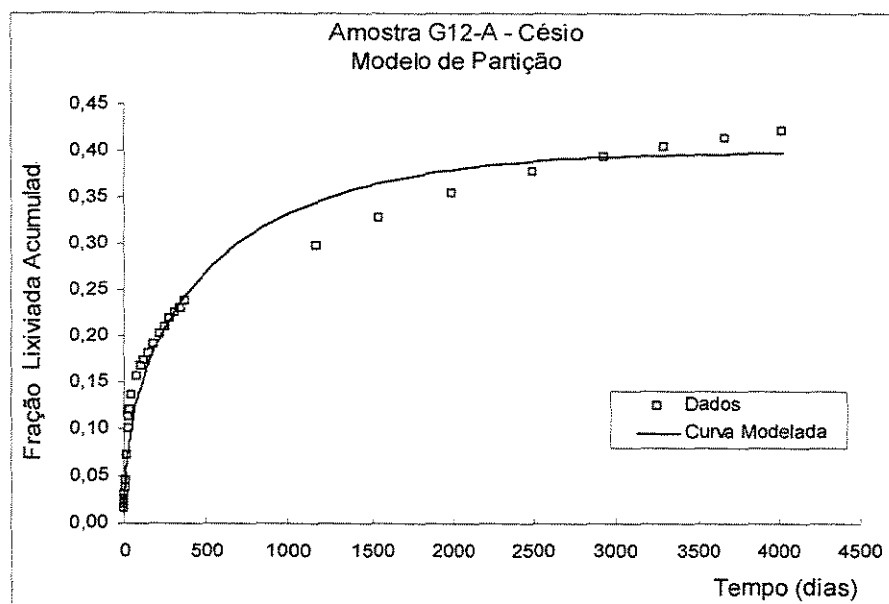


FIGURA 4.15

Fração lixiviada acumulada em função do tempo e a curva modelada para o modelo de partição para a amostra G12-A ($D_e = 1,30 \text{ E-}8 \text{ cm}^2/\text{s}$ e $E_r = 5,71\%$)

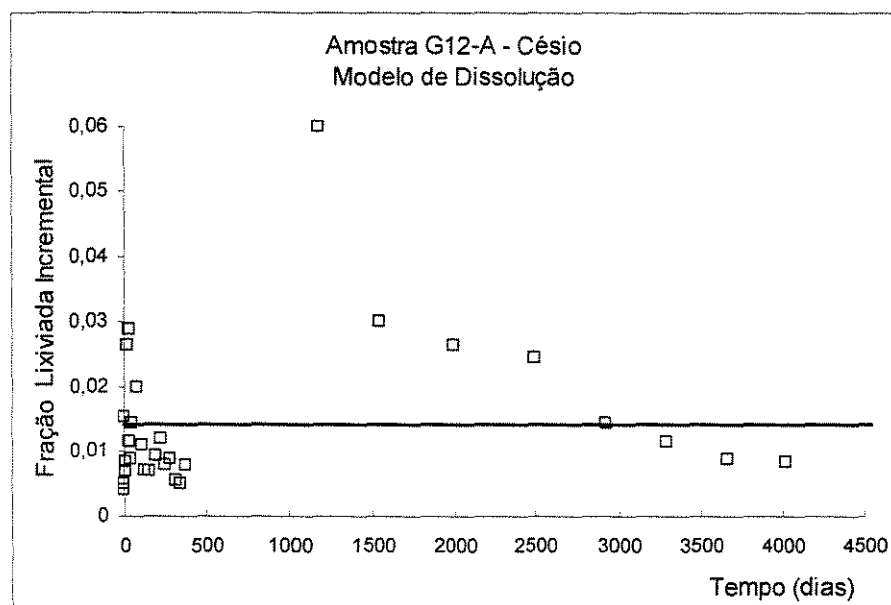


FIGURA 4.16

Fração lixiviada incremental em função do tempo e a curva modelada para o modelo de dissolução para a amostra G12-A (IFL = $1,43 \text{ E-}2$; Variância = 82,60)

Na Tabela 4.9 são sumariados os resultados para cada amostra individual por tipo e quantidade de bentonita adicionada ao produto cimentado. Foram

calculados os coeficientes de difusão para os dois mecanismos mais prováveis, bem como os desvios, em %, entre os valores experimentais e os modelados.

TABELA 4.9
Coeficientes de difusão (D_e) das amostras do ensaio de lixiviação obtidos usando o programa de computador ALT

Bento Tipo	nita (%)	Mistura	Amostra	Modelo de Difusão		Modelo de Partição	
				D_e (cm ² /s)	Desvio (%)	D_e (cm ² /s)	Desvio (%)
-----	0	B	A	1,79E-08	4,13	1,79E-08	4,13
			B	2,01E-08	5,36	2,01E-08	5,36
			C	1,74E-08	3,57	1,74E-08	3,57
G	7	G7	A	9,62E-10	15,21	9,98E-09	3,63
			B	1,09E-09	7,58	7,04E-09	2,37
	10	G10	A	7,17E-10	7,78	5,64E-09	2,85
			B	7,96E-10	10,87	7,96E-10	10,87
	12	G12	A	6,85E-10	39,42	1,30E-08	5,71
			B	6,80E-10	38,17	1,31E-08	6,11
	15	G15	A	1,03E-09	59,34	1,74E-08	5,37
			B	1,09E-09	60,13	1,73E-08	4,88
F	7	F7	A	1,44E-09	3,90	5,16E-09	1,16
			B	1,09E-09	6,13	5,19E-09	1,57
	10	F10	A	1,11E-09	33,20	1,33E-08	3,43
			B	1,11E-09	9,82	7,40E-09	2,55
N	7	N7	A	3,42E-09	7,54	8,77E-09	1,94
			B	3,53E-09	12,24	1,08E-08	2,92
	10	N10	A	3,02E-09	15,83	1,16E-08	3,50
			B	3,01E-09	14,85	1,08E-08	3,25
	12	N12	A	2,45E-09	62,15	2,69E-08	13,54
			B	2,36E-09	54,60	2,28E-08	13,98
B	7	B7	A	3,61E-09	23,48	1,41E-08	6,40
			B	2,99E-09	33,53	1,66E-08	7,35
	10	B10	A	1,95E-09	23,66	1,28E-08	2,03
			B	1,70E-09	29,85	1,46E-08	2,44
	12	B12	A	1,86E-09	32,41	1,56E-08	2,44
			B	1,49E-09	33,97	1,25E-08	1,96

Pelos resultados apresentados na Tabela 4.9 verifica-se que, para a maioria das amostras dos ensaios de lixiviação, os desvios entre os dados experimentais e a curva para o modelo de partição foram menores do que 5 %, mostrando um bom ajuste dos dados para este modelo.

Como é previsto pela maioria dos pesquisadores, nos primeiros tempos a lixiviação foi governada pela difusão e em seguida, no caso dos experimentos deste trabalho, o mecanismo para a liberação foi também influenciado pelo

fenômeno da partição, causado provavelmente pela absorção do césio pela bentonita.

Mesmo onde o desvio para este modelo foi maior, ele ainda é menor do que aquele para a difusão sozinha, portanto pode-se usar os valores calculados para o coeficiente de difusão pelo programa ALT como dados de entrada para a avaliação do impacto causado pela deposição destes produtos em um repositório.

Através da análise dos dados de lixiviação pelo programa ALT chega-se também à mesma conclusão anterior, ou seja, que as bentonitas realmente são efetivas na retenção do césio em produtos de rejeito cimentado.

A título de comparação, são apresentados na Tabela 4.10 alguns coeficientes de difusão obtidos a partir de ensaios de lixiviação, realizados por RUDOLPH & KÖSTER [30], em produtos cimentados contendo bentonita alemã (5, 10 e 20%) e rejeito. A tendência de redução da liberação de césio com o aumento da quantidade de bentonita adicionada foi a mesma. Estes coeficientes são menores do que os encontrados neste trabalho e isto pode ser explicado pela diferença entre as quantidades de traçador colocadas nas amostras. Na pesquisa alemã foi usado o ^{137}Cs como traçador e na pesquisa do CDTN foi usado césio inativo, o que implicou na utilização de uma quantidade maior deste traçador na amostra (algumas vezes maior do que a real), para que se pudesse fazer a análise no lixiviante por longos períodos.

TABELA 4.10
Coeficientes de difusão (D_e) de produtos cimentados encontrados em
experimentos realizados no FZK, Alemanha.
(Água deionizada, 10% em peso de sais de rejeito) [30]

PRODUTO	E N S A I O			
	A C E L E R A D O		TEMPERATURA	AMBIENTE
	m^2/s	cm^2/s	m^2/s	cm^2/s
CP	7,3 E-11	7,3 E-07	4,7E-13	4,7E-09
CP + 5% B	8,6 E-13	8,6 E-09	8,0E-14	8,0E-10
CP + 10% B	2,9 E-14	2,9 E-10	-	-
CP + 20% B	7,3 E-15	7,3 E-11	2,0E-16	2,0E-12

CP = cimento Portland

B = Bentonita alemã

5. CONCLUSÕES

A cimentação de rejeitos radioativos pode ser feita em sistemas fixos ou móveis, em batelada ou continuamente. Todos estes processos têm como objetivo principal a obtenção de um produto solidificado de boa qualidade, cuja integridade no transporte e nos armazenamentos intermediário e final seja garantida, evitando-se, principalmente, a liberação de radioelementos para o meio ambiente.

A avaliação do produto é feita através de vários ensaios como por exemplo, de resistência à compressão, à corrosão e à lixiviação.

Através dos ensaios de lixiviação são medidas as quantidades de radionuclídeos liberados, quando amostras do produto (simulado ou real) são colocadas em contato com soluções lixiviantes. Existem vários métodos propostos para estes ensaios e eles são utilizados de acordo com a necessidade e o objetivo de cada pesquisa.

Dois fatores que favorecem a liberação de radioelementos, como o cézio, contidos no produto cimentado são a sua porosidade e o fato de não haver reação química ou física entre a matriz e alguns elementos do rejeito. A fim de melhorar a resistência à lixiviação, certos materiais podem ser adicionados ao produto cimentado, como, por exemplo, as argilas.

Uma das argilas que tem mostrado eficácia na retenção de cézio em produtos cimentados de rejeitos radioativos é a bentonita. Para se avaliar quatro bentonitas nacionais disponíveis comercialmente, denominadas G, F, N e B, foram realizados diversos ensaios com misturas cimento/rejeito/argila. As amostras foram preparadas incorporando-se 10% de sais de rejeito simulado e variando-se o teor da argila de 7 a 15%, usando-se o cézio como traçador. Após uma seleção preliminar através de ensaios de resistência à compressão, de viscosidade e de tempo de pega, as misturas foram submetidas a ensaios de lixiviação.

Verificou-se que com a adição de bentonita, independente do tipo, há um efeito positivo na retenção do cézio, em comparação às misturas sem aditivo, efeito este mais pronunciado com o aumento do teor de bentonita. No primeiro ano a retenção passou de 68% para 42%, no pior caso (37% de efetividade) e no

melhor caso para 23%, ou seja, 65% de efetividade. Este resultado foi comprovado para o período estudado de 10 anos, havendo também o decréscimo de cerca de uma ordem de grandeza nas taxas de lixiviação em relação ao produto sem bentonita.

Observa-se, também, que para se avaliar o comportamento a longo prazo dos produtos cimentados de rejeito, é importante o conhecimento dos mecanismos da lixiviação e dos fatores que a afetam. Os ensaios a curto prazo são mais adequados para comparações entre produtos, não fornecendo segurança para predições a longo prazo, uma vez que mesmo estabelecido o modelo a partir desses ensaios, os mecanismos podem modificar-se com o tempo, invalidando-o.

Para que se pudesse determinar o mecanismo controlador desta liberação, os resultados dos ensaios de lixiviação obtidos em 10 anos foram analisados através do programa de computador ALT, um programa desenvolvido para modelar resultados de lixiviação (Accelerated Leaching Test) e que contém quatro modelos matemáticos que descrevem os seguintes mecanismos de lixiviação: difusão através de um meio semi-infinito, difusão através de cilindro finito, difusão mais partição do termo fonte e lixiviação limitada pela solubilidade.

O modelo que melhor se ajustou aos dados experimentais foi o de partição, encontrando-se coeficientes de 10^{-8} a 10^{-10} cm²/s, sendo que os menores coeficientes de difusão foram encontrados para as misturas contendo a bentonita G, nas proporções de 7 e 10 % e 7% da bentonita F.

Isto indica que, além da difusão, pode ter havido outro(s) processo(s) influenciando a lixiviação do cézio. Uma hipótese provável é a absorção do cézio pelas bentonitas, propriedade que foi verificada nos testes com estas argilas demonstrando sua grande capacidade para absorver o cézio.

O coeficiente de difusão pode variar com o tempo, pois ele depende da concentração do radioelemento no produto e no lixiviante, que por sua vez é afetada pela frequência de troca deste último.

Ele varia também com a porosidade do produto, ou seja, uma maior porcentagem de porosidade interligada leva a um D maior. A dissolução de sais solúveis presentes no produto tenderia também a aumentar este coeficiente pelo

aumento da porosidade. Então observa-se que ocorrendo qualquer um destes casos, a lixiviação do césio seria por difusão, porém com diferentes velocidades de liberação, indicadas pela variação do D.

As pesquisas descritas neste trabalho serviram de base para a definição de parâmetros para o tratamento dos rejeitos gerados no acidente radiológico ocorrido em Goiânia em 1987 com uma fonte de ^{137}Cs . Têm sido de grande importância para os estudos de otimização do processo de solidificação de rejeitos gerados em Angra 1 e outros rejeitos perigosos gerados por indústrias não nucleares, tanto no Brasil como em outros países da América Latina.

6. SUGESTÕES

Os resultados aqui obtidos podem servir como base para estudos do comportamento a longo prazo de produtos cimentados contendo argilas. Neste caso os ensaios, especialmente os de lixiviação, devem ser realizados visando a deposição em um repositório.

Para o estabelecimento do mecanismo de lixiviação, ensaios estáticos e dinâmicos a longo prazo devem ser feitos, sob condições que simulam aquelas do repositório, e medidos diversos parâmetros, como, por exemplo, o coeficiente de distribuição (K_d) dos radionuclídeos.

O prosseguimento dos estudos realizados deverá incluir a avaliação de outros fatores que influenciam na qualidade do produto, como as condições e o tempo de cura, a porosidade, a quantidade de rejeito incorporado e a utilização de aditivos químicos.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] SILVA, E. M. P. **Estudo teórico do comportamento químico de alguns radionuclídeos no produto cimentado**. 1997. 94 f. Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Departamento de Engenharia Nuclear, Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte.
- [2] COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Licenciamento de instalações radioativas**. Rio de Janeiro: CNEN, 1984. 22p. (CNEN-NE 6.02).
- [3] COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Gerência de rejeitos radioativos em instalações radiativas**. Rio de Janeiro: CNEN, 1985. 56p. (CNEN-NE-6.05).
- [4] IAEA BULLETIN – **Quarterly journal of the International Atomic Energy Agency**. Vienna: IAEA, v. 42, n.3, Sept. 2000, 76 p.
- [5] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Review of factors affecting the selection and implementation of waste management technologies**. Vienna: IAEA, Aug. 1999, 73p. (IAEA-TECDOC-1096).
- [6] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Report on radioactive waste disposal**. Vienna: IAEA, 1993. (Technical Reports Series No. 349).
- [7] BIRD, G. W. Geochemistry of radioactive wastes disposal. **Geoscience Canada**, Calgary, v. 6, n.4, p.199-204. s. d.
- [8] SERNE, R. J. et al. **Review of geochemical processes and codes for assessment of radionuclide migration potential at commercial LLW sites**. Richland: Pacific Northwest Laboratory, 1990, 113 p. (NUREG/CR – 5548).
- [9] TAPLIN, D., CLARIDGE, F.B. **Performance of engineers barriers for low-level waste**. Ottawa: Atomic Energy Control Board, 1987, 77 p. (INFO-0274).
- [10] SHIMOOKA, K.; WADACHI, Y. Migration and diffusion of radionuclides in engineered barrier system. In: NEA WORKSHOP ON NEAR-FIELD ASSESSMENT OF REPOSITORIES FOR LOW AND MEDIUM LEVEL RADIOACTIVE WASTE, 1987, Baden, Switzerland. **Proceedings...** Baden, 1987, p.271-284.
- [11] EMPRESA NACIONAL DE RESÍDUOS RADIATIVOS S.A. **El Cabril – Centro de almacenamiento de baja y media actividad**. Madrid: ENRESA, ene. 2000, 12p.
- [12] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Improved cement solidification of low and intermediate level radioactive wastes**. Vienna: IAEA, 1993, 110 p. (Technical Reports Series No. 350).
- [13] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Conditioning of low-and intermediate-level radioactive wastes**. Vienna: IAEA, 1983, 186 p. (IAEA Technical Report Series No. 222).

- [14] TELLO, C. C. O. **Avaliação de Bentonitas Nacionais como Aditivo na Cimentação de Rejeitos Radioativos**. 1989, 142 p. Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Departamento de Engenharia Nuclear, Escola de Engenharia, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte: UFMG/NUCLEBRAS/CDTN. (CDTN 620).
- [15] STONE, J. A. An overview of factors affecting the leachability of nuclear waste forms. **Nuclear and Chemical Management**, Oxford, v. 2, p. 113-118, 1981.
- [16] DINIZ, P. S. **Estudo do ensaio de resistência à compressão para rejeitos tóxicos / radioativos tratados por cimentação, visando a qualificação / certificação de ensaios**. 1999, 102 p. Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Departamento de Engenharia Nuclear, Escola de Engenharia, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte.
- [17] SANDOVAL, R. P. et alii. **The fraction of waste contents released from 55 - gallon drums to the TRUPACT-1 cavity during type B package testing**. Albuquerque: Sandia National Labs., 1985. (SAND-84 2645).
- [18] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Characterization of radioactive waste forms and packages**. Vienna: IAEA, 1997, 138 p. (Technical Reports Series N°. 383).
- [19] OLIVEIRA, C. C. **Uso de materiais naturais no tratamento de rejeitos**. 1980. Monografia (Conclusão do Curso de Especialização em Tecnologia Nuclear) – Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear/NUCLEBRÁS/Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte.
- [20] SANTOS, P. S. **Tecnologia das argilas**. São Paulo: Edgard Blücher, 1975.
- [21] GRIM, R. **Clay Mineralogy**. New York: McGraw-Hill, 1953, 69p.
- [22] SÜD-CHEMIE AG. **Was ist Bentonite/s.n.t./**.
- [23] ULLMANN ENZYKLOPÄDIE. Tonminerale../s.n.t./v.17, p.583-597.
- [24] HESPE, E.D. Leach testing of immobilized radioactive waste solids. A proposal for a standard method. **Atomic Energy Review**, v. 9, n.1, p. 195-207, 1971.
- [25] INTERNATIONAL STANDARDS ORGANIZATION. **ISO 6961: long-term leach testing of radioactive waste solidification products**. Genève, 1979. (Draft ISO 6961).
- [26] AMERICAN SOCIETY TESTING AND MATERIALS. **ASTM C 1308-95: standard test method for accelerated leach test for diffusive releases from solidified waste and a computer program to model diffusive, fractional leaching from cylindrical waste forms**. New York, Apr. 1996.
- [27] POTTIER, R. et alii. An assessment of the role of testing and prediction of waste form performance for storage and disposal. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE CONDITIONING OF RADIOACTIVE WASTES

- FOR STORAGE AND DISPOSAL, 1982, Utrecht, 21-25 Jun. **Proceedings...** Vienna: IAEA, 1983, p.347-56. (IAEA-SM-261/41).
- [28] BOUNIOL, P. **Étude des mecanismes de piègeage du cesium par des mélanges additif-ciment pour le conditionnement des déchets nitrés.** Foutenay-aux-Roses: CEA, 1985, 53 p. (CCE N°. WAS-441-85-13-F).
- [29] GLASSER, F. P. et alii. **Immobilization and leaching mechanisms of radwaste in cement-based matrices.** London: Department of the Environment, 1983, 96 p. (DOE-RW-83.093).
- [30] RUDOLPH, G. & KÖSTER, R. **Stoffliche Untersuchungen zur Vesfestigung mittelaktiver Abfallösungen mit Zement: Auslaugbarkeit von Cäsium und Strontium.** Karlsruhe: Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1979, 38 p. (KfK-2842).
- [31] LEE, D. J. & BROWN, D. J. **Factors affecting the leach-ability of caesium and strontium from cemented simulant evaporator wastes.** Winfrith: UKAEA Atomic Energy Research Establishment, 1981, 60 p. (AEEW-R-1461).
- [32] MATSUZURU, H. & ITO, A. Immobilization of Cs-137 in cement-waste composites by addition of mineral zeolites. **Health Physics**, v. 34, p. 643-648, Jun. 1978.
- [33] RUDOLPH, G. et alii. Leach and corrosion tests under normal and accident conditions on cement products from simulated intermediate level evaporator concentrates. In: MOORE, J.G. ed. **Scientific basis for nuclear waste management.** New York: Plenum Press, 1981. v. 3, p.339-346. (Annual meeting of the Materials Research Society, Boston, 17-20 Nov. 1980).
- [34] ATKINSON, A. et alii. The mechanism of leaching from some cement-based nuclear wasteforms. **Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle**, v. 4, n. 4, p.357-378, Feb.1984.
- [35] AMERICAN NUCLEAR SOCIETY. **ANS-16.1: measurement of the leachability of solidified low-level radioactive wastes: a preliminary guide.** La Grange Park, 1975. (ANS Working Group 16.1 August 31, 1979).
- [36] CRAWFORD, R.W. et alii. Diffusion mechanisms and factors affecting leaching of Cs-134 from cement – based waste matrices. **Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle**, v. 6, n. 2, p.177-196, Jun. 1985.
- [37] ATKINSON, A. Mathematical modeling of leaching from porous nuclear waste forms. **Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle**, v. 3, n. 3-4, p. 371-386, Jun. 1983.
- [38] COLOMBO, P. et alii. **Leaching mechanisms of solidified low-level waste.** Upton: Brookhaven National Laboratory, 1985, 53 p. (BNL-51899).
- [39] DOZOL, M. et alii. **Leaching of low and medium level waste packages under disposal conditions.** Brussels: Commission of the European Communities, 1985, p. 87-102. (EUR-10-220).

- [40] RAHMAN, A. A. & GLASSER, F. P. **Characterization requirements of cement products for acceptance and quality assurance purposes.** Brussels: Commission of the European Communities. 1986, 190 p. (WAS-0439).
- [41] AMARANTOS, S. et alii. Behavior of intermediate-level waste forms in an aqueous environment. In: EUROPEAN COMMUNITY CONFERENCE ON RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT AND DISPOSAL, 2, 1985,, Luxemburg, 22-26 Apr. **Proceedings...** Cambridge: Cambridge University Press, 1986. p.252-74. (EUR-10163).
- [42] ANDERSON, K. et alii. **Sorption and diffusion studies of Cs and I in concrete.** Göteborg: Chalmers University of Technology, Dept. of Nuclear Chemistry, 1983, 23 p.
- [43] DAYAL, R. et alii. **Leaching studies of low-level radioactive waste forms.** Upton: Brookhaven National Laboratory, 1985, 7 p. (BNL-NUREG-36715).
- [44] GODBEE, H. W. & JOY, D.S. **Assessment of the loss of radioactive isotopes from waste solids to the environment. Part I: Background and theory.** Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1974, 57 p. (ORNL-TM-4333-Pt.1).
- [45] GODBEE, H. W. et alii. Assessment of the loss of radioactive isotopes from solidified wastes. **Trans. Am. Nucl. Soc.**, v. 28, p. 135-137, Jun. 1978.
- [46] GODBEE, H. W. et alii. **Application of mass transport theory to the leaching of radionuclides from waste solids.** Nuclear and Chemical Waste Management, v. 1, p. 29-35, 1980.
- [47] POTTIER, P. E. & GLASSER, F. P. **Characterization of low- and medium-level radioactive waste forms. Final report – 2nd. Programme 1980-1984.** Luxemburg: Commission of the European Communities. 1985, 278 p. (EUR-10579).
- [48] CHEUNG, S.C.H. et alii. Factors influencing mass diffusion in bentonite and mixtures of bentonite and sand. In: MATERIAL RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM, **Proceedings ...** 1984, v. 26, p. 711-718.
- [49] CHEUNG, S.C.H. et alii. Diffusion of Cs⁺ and I⁻ in compacted bentonite – based materials. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT, 2., 1986, Winnipeg 7-11, Sept. **Proceedings...** Toronto: Canadian Nuclear Society, 1986, p.217-20.
- [50] MUURINEN, A. et alii. Diffusion mechanisms of strontium, cesium and cobalt in compacted sodium bentonite. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE SCIENTIFIC BASIS NUCLEAR WASTE MANAGEMENT, 9., 1985, Stockholm, 9-11, Sept. **Proceedings...**ed. Lars O. Werme, 1985, v. 50, p. 617-624.
- [51] TORSTENFELT, B. & ALLARD, B. The retention of redox sensitive waste elements in compacted bentonite. In: MATERIAL RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM, **Proceedings ...** 1984, v. 26, p. 789-795.

- [52] TELLO, C. C. O. & ASTOLFI, S.D. **Avaliação dos materiais naturais na cimentação de rejeitos radioativos**. Parte I. Belo Horizonte: NUCLEBRÁS/CDTN, 1981, 41 p. (Nota Técnica DETQ/DITRR.PD-016/81).
- [53] TELLO, C. C. O. **Avaliação de materiais naturais nacionais na cimentação de rejeitos radioativos**. Parte II. Belo Horizonte: NUCLEBRÁS/CDTN, 1982, 34p. (Nota Técnica DETQ/DITRR.PD-015/82).
- [54] TELLO, C. C. O. **Avaliação de materiais naturais nacionais na cimentação de rejeitos radioativos**. Parte III. Belo Horizonte: NUCLEBRÁS/CDTN, 1984, 26p. (Relatório de Progresso DETQ.PD-005/84).
- [55] BURNS, R. H. Solidification of low – and intermediate level wastes. **Atomic Energy Review**, v.9, n. 3, p: 547-599. 1961.
- [56] Dados do fornecedor.
- [57] TELLO, C. C. O. **Ensaio para a Determinação de Viscosidade em Misturas de Cimento Contendo Bentonita e Rejeito Simulado**. Belo Horizonte: CNEN/CDTN, 1988. (Procedimento).
- [58] ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE CIMENTO PORTLAND. **Manual de ensaios físicos de cimento**. São Paulo: ABCP, 1994, 74p. (ABCP MT-3).
- [59] ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 7215: ensaio de cimento Portland: método de ensaio**. Rio de Janeiro, fev. 1982.
- [60] TELLO, C. C. O. **Ensaio para a determinação do tempo de pega de misturas de cimento contendo bentonita e rejeito simulado**. Belo Horizonte: CNEN/CDTN, 1989. (Procedimento TQ-047).
- [61] AMERICAN SOCIETY TESTING AND MATERIALS. **ASTM C 39-72: standard test method for compressive strength of cylindrical concrete specimens**. Philadelphia, 1978.
- [62] TELLO, C. C. O. **Ensaio de resistência à compressão em corpos-de-prova de cimento contendo bentonita e rejeito simulado**. Belo Horizonte: CNEN/CDTN, 1989. (Procedimento TQ-042).
- [63] FUHRMAN, M. et alii. **User's guide for the accelerated leach test computer program**. Upton: BNL, Nov. 1990, 166p. (BNL 52237)
- [64] RUDOLPH, G. et alii. **Untersuchungen zum Abbindeverhalten von Zementsuspension**. Karlsruhe: Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1982, 39 p. (KfK-3401).
- [65] Comunicação pessoal.
- [66] HABAYEB, M. A. Leaching performance of cemented decontamination wastes. **Nuclear and Chemical Waste Management**, v.5, p.305-314, 1985.
- [67] MATSUZURU, H. et alii. Leaching behavior of cesium-137 in cement-waste composites. **Health Physics**, v. 32, p. 529-534, Jun. 1974.

- [68] BURNAY, S.G. Leaching of ^{137}Cs from an epoxide resin. **Nuclear and Chemical Waste Management**, v.6, p.139-150, 1986.

ANEXOS

ANEXO A – TEORIA MATEMÁTICA DO PROGRAMA COMPUTACIONAL ALT

APPENDIX A

THEORY

Models based on mass transport theory that have been validated with experimental data are regarded as an excellent means of estimating the amounts of material released by solidified waste. Critical to the evaluation of observed leaching results is the comparison with the theoretical models for diffusional release. The simplest models used for comparison with experimental results are for bulk diffusion.

Bulk Diffusion

The mathematical theory of transport by diffusion from solids is based on Fick's hypothesis that the diffusion rate is proportional to the concentration gradient[1,2]. The fundamental partial differential equation for diffusion is:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = - D_e \nabla^2 C \quad (1)$$

where C is the concentration of the species, t is time, and D_e is the effective diffusion coefficient in porous media.

Mathematical solutions to the transport equation for diffusion have been applied to the leaching of radionuclides from waste solids[3,4]. The exact form of the solution to the mass transport equation of diffusion depends on the initial and boundary conditions of the problem. The semi-infinite media and the finite shape models are the most direct and generally used.

Semi-Infinite Media Model

A simple case is that of a semi-infinite solid with a constant diffusion coefficient where ideally the cumulative fraction released from a porous medium is predicted as:

$$CFL = \frac{\sum a_n}{A_o} = 2 \frac{S}{V} \left[\frac{D_e t}{\pi} \right]^{1/2} \quad (2)$$

where a_n is the total amount of radioactive material released in all leaching periods up to time, t , A_0 is the initial amount of radioactive material, V is the waste form volume, S is the waste form surface area, D_e is the effective diffusion coefficient. The semi-infinite model has been used to model leaching behavior when the cumulative fraction leached ($CFL = \Sigma a_n / A_0$) is less than 0.20 or 20% release.

Finite Shape Models

Laboratory samples are often leached well beyond the 20% maximum limit for the semi-infinite model. Consequently, the analytical solution for diffusion from a finite shape must be used to account for depletion of the source term. Cylindrical shaped waste forms are commonly used. Hence the exact solution for diffusion from a finite cylinder using a constant diffusion coefficient, as described by Nestor, is appropriate. The solution of the mass transport equation for a constant diffusion coefficient, a uniform and homogeneous solid and zero surface concentration during leaching is:

$$CFL = \frac{\sum a_n}{A_0} = 1 - \frac{32}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{e^{-D_e (\beta_m^2 + (2n-1)^2 \pi^2 / 4 \ell^2) t}}{(2n-1)^2 (\beta_m)^2} \quad (3)$$

where D_e = effective diffusion coefficient (cm^2/s), ℓ = half height of the cylinder (cm), a_n is the cumulative leached activity, A_0 = initial total activity, m = positive roots of Bessel function where, $J_0(r\beta_m) = 0$.

The finite cylinder model provides a guideline to determine if diffusion continues to consistently operate as the release mechanism during leaching tests. However, the use of equation (3) has been frustrated by the slow convergence of the double infinite series. Consequently, several investigators have presented alternative methods of using the difficult to evaluate double infinite series solution for diffusion from a finite cylinder[4,5,6,7]. Pescatore's technique transformed the double series into a rapidly converging form for which the error associated with the truncation of each series can be evaluated.

For finite cylinder waste forms of height H and radius R, one uses instead the double series expression:

$$CFL = \sum a_n / A_o = (1-b)[1 - 32/\pi^2 S_p(t) S_c(t)] + b \quad (4)$$

with:

$$S_p(t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp\{-(2n-1)\pi/H\}^2 D_e t\}}{(2n-1)^2}$$

and:

$$S_c(t) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\exp[-(\beta_m/R)^2 D_e t]}{\beta_m^2}$$

For the $S_p(t)$ series:

$$S_p(t) = S_{p,N}(t) + E_{p,N}(t) \quad (5)$$

with:

$$S_{p,N}(t) = \sum_{n=1}^{N-1} \frac{\exp[-(2n-1)^2 \gamma^2(t)]}{(2n-1)^2} + \frac{N}{(2N-1)^2} \exp[-(2N-1)^2 \gamma^2(t)]$$

$$- (\sqrt{\pi/2}) \gamma(t) \operatorname{erfc}[(2N-1) \gamma(t)]$$

$$\gamma(t) = \frac{\pi(D_e t)^{1/2}}{H}$$

and:

$$0 < E_{p,N}(t) < \frac{1}{6(2N-1)} [\gamma^2(t) + 2/(2N-1)^2] \exp[-(2N-1)^2 \gamma^2(t)]$$

and for the $S_c(t)$ series:

$$S_c(t) = S_{c,M}(t) + E_{c,M}(t) \quad (6)$$

with:

$$S_{c,M}(t) = \sum_{n=1}^{M-1} \frac{\exp[-\beta_n \theta^2(t)]}{\beta_n^2} + \frac{1}{\beta_M f_M} + \frac{1}{2\beta_M^2} \exp[-\beta_M^2 \theta^2(t)]$$

$$- \frac{\sqrt{\pi \theta(t)}}{f_M} \operatorname{erfc}[\beta_M \theta(t)],$$

$$f_M = \pi - 1/(8\pi M^2), \quad M \gg 1$$

$$\theta(t) = \frac{(Dt)^{1/2}}{R}$$

and:

$$E_{c,M}(t) < \frac{\pi}{6\beta_M} \left[\theta^2(t) + \frac{1}{\beta_M^2} \right] \exp[-\beta_M^2 \theta^2(t)]$$

In practice, an intercept term, b , which has been added to equation (4), can be used to improve the fit of the model since extrapolation of observed results to $t=0$ does not necessarily pass exactly through $CFL=0$. For low-level waste forms this intercept, b , is often small ($<0.5\% A_0$) and has been referred to as the instantaneous wash-off term for extraneous surface material.

The ALT computer program uses the semi-finite media model when $CFL < 0.0124$, and the finite cylinder model (Equation 4) for greater CFL values. This is done to provide the minimum error in modeling results. The program also includes an intercept term that allows for instantaneous wash off.

Diffusion Plus Partitioning of the Source Term

Through our analysis of experimental data it has become apparent that the finite cylinder model alone cannot adequately describe releases from many types of materials. Several physical and chemical mechanisms may take place within and on the surfaces of waste forms that can result in curves of CFL vs time becoming asymptotic before $CFL = 1.00$ (100% release). The precise nature of these processes is material specific and can include:

- physical adsorption of ions onto surfaces,
- substitution of a proportion of a species in the lattice structure of a new phase, and
- multiple sources of wastes leading to species being present in two or more chemical forms, having different solubilities.

In all of these cases the effect is similar in that the species of interest is partitioned between a fraction that is available for leaching and a fraction that is not. The partitioning process is essentially a reduction of the source term (A_0), with the assumption that partitioning results in a fraction of the species that is not released, or is released at a rate that is so low that it is not detectable. This model has been used for a variety of elements leached from several types of cement-based waste forms and was often able to provide goodness-of-fit (E_r) values that were far superior to the diffusion model. An example of the effectiveness of this model is shown in Figure A1, in which data from a leaching experiment is shown with curves generated by the model for diffusion from a finite cylinder and from the model for diffusion plus partitioning.

The partition model uses the model for diffusion from a finite cylinder (or from a semi-infinite cylinder if the $CFL < 0.0124$), but alters the result by reducing the original source term so that the cumulative fraction leached is determined as follows:

$$CFL = \frac{\sum a_N}{A_0 P} - 2 \frac{S}{V} \left[\frac{D_e t}{\pi} \right]^{1/2}$$

where a_n is the total amount of radioactive material released in all leaching periods up to time t , A_0 is the initial source term which is the amount of radioactive material originally present in the solid sample, P is the source term partitioning factor, which is $0 < P < 1$, V is the volume of the solid sample, S is the geometric surface area of the solid sample, and D_e is the effective diffusion coefficient. There is, therefore, a fraction of activity that is not leached but retained on the solid:

$$FR = \frac{A_0 - A_0 P}{A_0} = 1 - P$$

where FR is the fraction of activity retained on the solid.

Certain caveats are necessary in using this model. Embodied in it is the assumption that the partitioning is absolute in the sense that the material unavailable for leaching will never leach out of the solid. This is not necessarily so. For example, releases from some materials may be best described by a model containing two diffusion coefficients; one being a much greater rate than the other. This model has not yet been added to the ALT program. In short-term tests the partition model will closely mimic the model using two diffusion coefficients, but extrapolations to longer times could be misleading. Therefore, no extrapolations are currently allowed when the partitioning model is used. Moreover, when the partitioning model is used to help define leaching mechanisms, we strongly recommended that other experimental evidence (in addition to the leach test data) should be used to verify the process of partitioning. In many cases, a simple batch-type adsorption test would suffice.

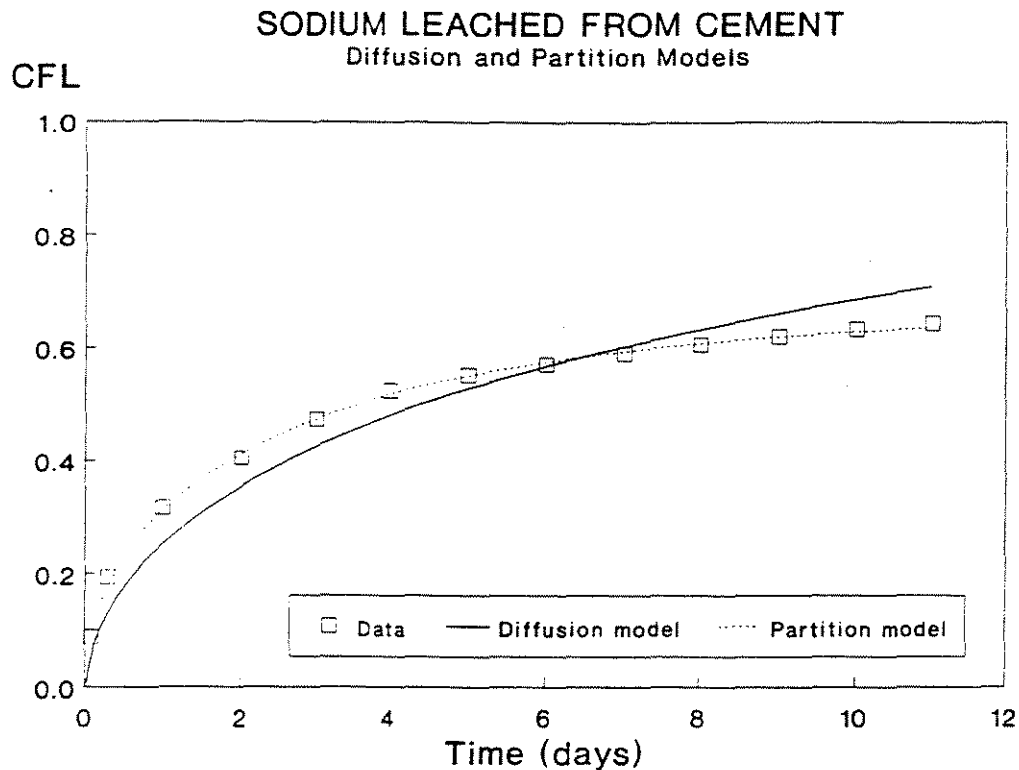


Figure A1. Experimental data as cumulative fraction leached, plotted as a function of time are shown as the squares. The finite cylinder diffusion model and the model in which the source term is partitioned are shown as lines fitted to the data. Data is for sodium leaching from portland cement containing sodium sulfate.

Dissolution

Solubility limited releases in leaching experiments are the result of two related processes:

- solubility limits constraining the dissolution of a phase inside the waste form, thereby reducing the leach rate and
- solubility acting on the leachate, as a new phase forms external to the waste form, to limit concentrations in the leachate.

In the first case, the shape of the CFL vs time plot can take two forms. If the dissolution rate is great compared to the diffusion rate out of the waste form, release will be controlled by diffusion and the plot will be a typical curve. If, however, the dissolution rate is small compared to the diffusion rate, then the plot will have a linear shape, indicating dissolution as the rate controlling mechanism.

In the second case, the plot of CFL vs time will also be linear as a result of a reaction between the components of the leachate and some external material generating a precipitate, leaving only a small amount of the component in solution. This will be the case when the reaction generating the precipitate is rapid compared to the rate of transport out of the solid. A typical example of this is as follows; the concentration of calcium in leachate generated from a cement sample is limited to about 6 mg/L by the solubility of several calcium carbonate minerals that form as precipitates in the leachate and as coatings on the sample. The precipitate is the reaction product of calcium and hydroxide ions leached from the cement and carbon dioxide drawn into solution from the air.

The dissolution model incorporated into the accelerated leach test computer program cannot be used to make long-term predictions, instead it is intended for use as an indicator of processes (such as precipitation) influencing the leach test. The concept involved is that the concentrations of the species that are solubility controlled will be the same at all leaching intervals. This means that the incremental fraction leached will be the same for all intervals and the cumulative fraction leached will increase by the same amount at each interval, producing the linear form of the plot showing CFL vs time. A plot of IFL vs time is a horizontal line. In reality a plot of IFL vs time shows a distribution around a mean value of IFL, which can be described by a statistical analysis of the data. For the ALT program, the coefficient of variation is used to evaluate the goodness-of-fit of the experimental data compared to the model (the average). The equation to calculate the coefficient of variation is shown below and is a way of normalizing the standard deviation so that it can be expressed as a percentage of the mean:

$$V = \frac{S \times 100}{\bar{x}}$$

where S is the standard deviation and \bar{x} is the mean IFL, and V is the coefficient of variation. The standard deviation (S) is calculated as follows:

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n-1} (X - \bar{x})^2}{n-1}}$$

where n is the number of data points and X is the IFL of individual data points. The first two data points are not included in the calculation because experimental data indicate that the time intervals for those samplings are too small to allow solubility limits to be reached. A coefficient of variation of 10% indicates that the data fits this linear model and that solubility limits control releases.

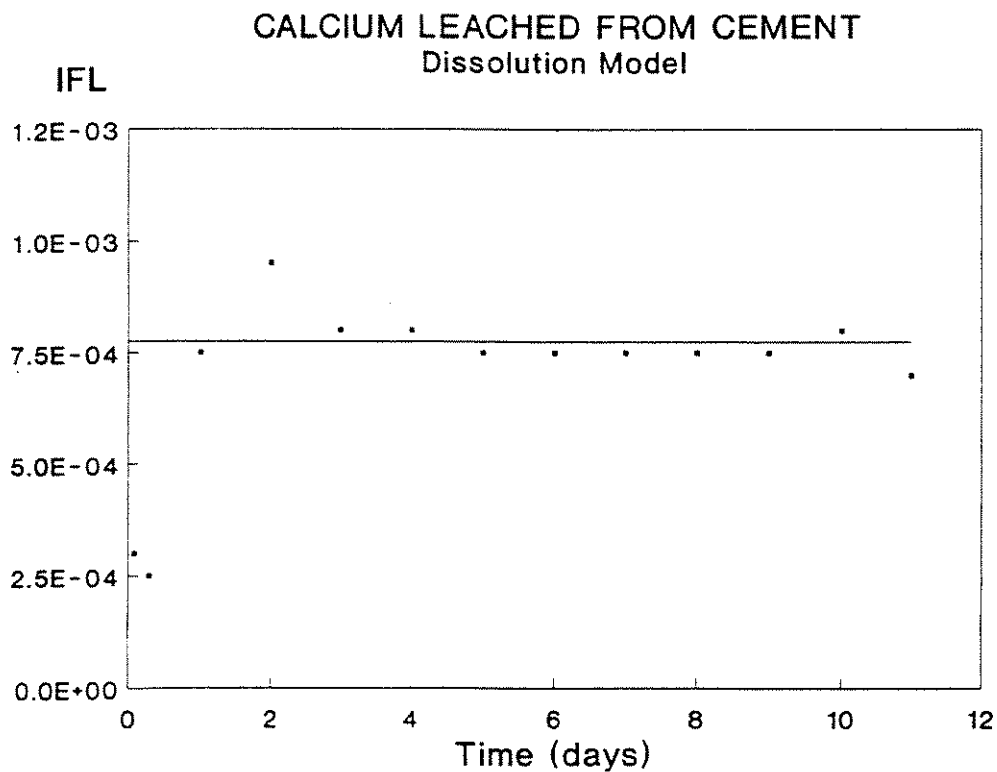


Figure A2

A plot of incremental fraction leached (IFL) as a function of time illustrates solubility limited release. IFL is described by a mean value with a distribution about that mean. The first two data points are ignored because the time intervals between samplings are too short to be useful in this model.

REFERENCES

APPENDIX A

1. Crank, J., The Mathematics of Diffusion, Claredon Press, Oxford (1975).
2. Godbee, H.W., E.L. Compere, D.S. Joy, A.H. Kibbey, J.G. Moore, C.W. Nestor, Jr., O.U. Anders and R.M. Neilson, Jr., "Application of Mass Transport Theory to the Leaching of Radionuclides of Waste Solids," Nuclear and Chemical Waste Management, Vol. 1, pp. 29-35 (1980).
3. Machiels, A.J. and C. Pescatore, "Modeling of Waste Form Leaching, Part I Status of Leaching Modeling," Technical Report, UILU-ENG-82-5319, University of Illinois (March 1982).
4. Thomas, G.F., "Diffusional Release of a Single Component Material from a Finite Cylindrical Waste Form," Ann. Nucl. Energy, V14.283 (1987).
5. Ganapol, B.D., "Evaluation of the Material Release from a Cylindrical Waste Form via Laplace Transforms," R.G. Post (editor), Waste Management 88, Vol. 1, pp.493-499 (1988).
6. Nestor, C.W., "Diffusion from Solid Cylinders," ORNL/CSD/TM 84, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN (1980).
7. Pescatore, C., "Improved Expressions for Modeling Diffusive, Fractional Cumulative Leaching from Finite-size Waste Forms," Waste Management, Vol. 10, pp. 155-159 (1990).

ANEXO B – GLOSSÁRIO USADO NA TEORIA DO PROGRAMA COMPUTACIONAL ALT

APPENDIX B

GLOSSARY

Acceleration Factor. Ratio calculated as the time required to reach a certain Cumulative Fraction Leached for an accelerated leach test divided by the time required by a reference leach test to reach that same Cumulative Fraction Leached.

Accelerated Leach Test. A leach test procedure that provides greater release rates than those obtained through standard leach tests. Test conditions, such as elevated temperature and increased volume of leachant can be used to increase release rates without changing the mechanisms of leaching.

Cumulative Fraction Leached (CFL). The sum of the fractions leached during all sampling intervals calculated as:

$$CFL = \Sigma a_n / A_0$$

and assuming no radioactive decay.

Diffusion Coefficient. (Diffusivity) Based on Fick's Laws for diffusion, the diffusion coefficient is the ratio of the rate of transfer of a diffusing substance through the unit area of a section to the concentration gradient measured normal to the section. The diffusion coefficient is symbolized by D.

Diffusion Model. Computer algorithm using diffusion theory to describe leaching. Two diffusion models are used in the ALT program: diffusion from a semi-infinite medium and diffusion from a cylinder.

Dissolution Model. Computer algorithm that statistically analyses IFL values throughout an experiment by calculating a mean and the distribution about the mean. A consistent value of IFL indicates solubility controls on the concentration of the species of interest in the leachate.

Effective Diffusion Coefficient. (Effective Diffusivity) The diffusion coefficient that results from diffusion as it is modified by other processes (e.g. adsorption) or physical constraints (tortuosity and constrictivity). The effective diffusion coefficient is symbolized by D_e .

Finite Cylinder. (Finite Medium) A bounded body for which the diffusion equation can be solved.

Goodness-of-Fit. An expression indicating how closely a model generated curve comes to representing a data curve. In the ALT program, goodness-of-fit is represented quantitatively (for the diffusion model and the partition model) by the value E_R . This is the sum-of-the-residuals expressed as a percentage of the final CFL of the experimental data. For the dissolution model, goodness-of-fit is indicated by the size of the distribution about a mean value of CFL. That distribution is described by the standard deviation, expressed as the coefficient of variation.

Incremental Fraction Leached (IFL). The fraction leached of a species of interest during a single sampling interval calculated as:

$$IFL = a_n/A_0$$

and assuming no radioactive decay.

Leachant. The liquid that contacts the specimen during a leach test or contacts a waste form in the disposal environment.

Leachate. The leachant after contacting the specimen or the waste form.

Leaching. The process (or processes) by which mass transport from a solid to a liquid takes place.

Leaching Interval. The length of time during which a given volume of leachant is in contact with a specimen.

Leaching Mechanism. The process which controls the rate of mass transport out of a specimen during leaching.

Low-Level Radioactive Waste. Waste that contains radioactivity and is not high-level waste, transuranic waste, or spent nuclear fuel as defined by Department of Energy Order 5820.2A. Test specimens of fissionable material irradiated for research and development only, and not for production of power or plutonium, may be classified as low-level waste, provided the concentration of transuranics is less than 100 nCi/g.

Partition Model. Computer algorithm, based on the diffusion models, that reduces the source term of the model. This implies that the species-of-interest is contained in two fractions: one leachable and the other not leachable.

Reference Leach Test. A leach test conducted under defined conditions where the results are used as a standard against which the results of other leach tests (e.g. accelerated) are compared.

Semi-dynamic Leach Test. A leach test method that exposes the specimen to fresh leachant on a periodic schedule.

Semi-infinite Medium. A body, used in diffusion theory, the outer boundary of which is effectively at an infinite distance from the inner region.

Solidification Agent. A material used to process waste into a solid, stable waste form.

Source Term. The original concentration of a species of interest in a specimen or a waste form, before leaching.

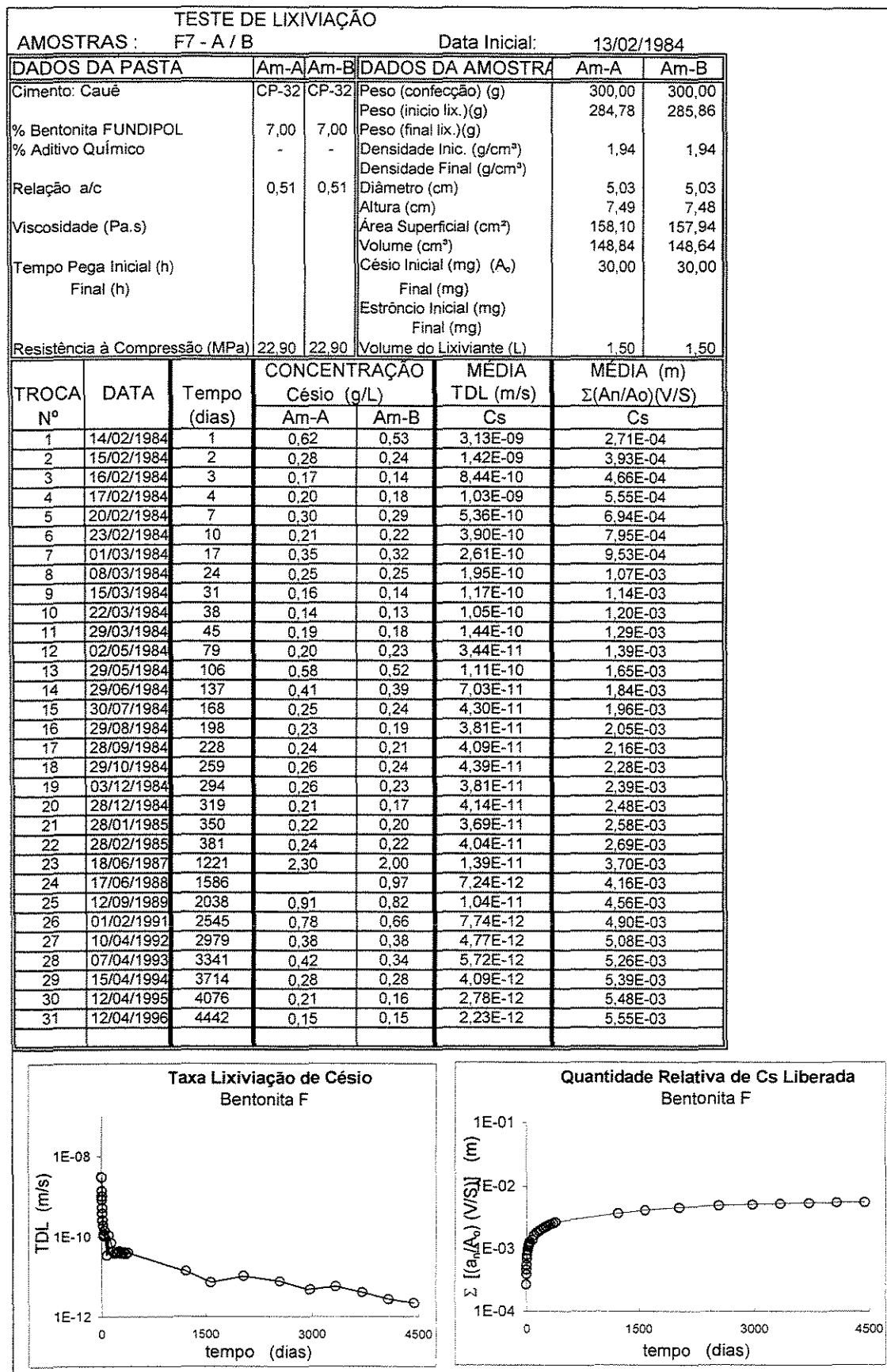
Sum-of-the-Residuals. The difference, taken at each data point, between the CFL of the model and the CFL of the data, summed through the entire data set.

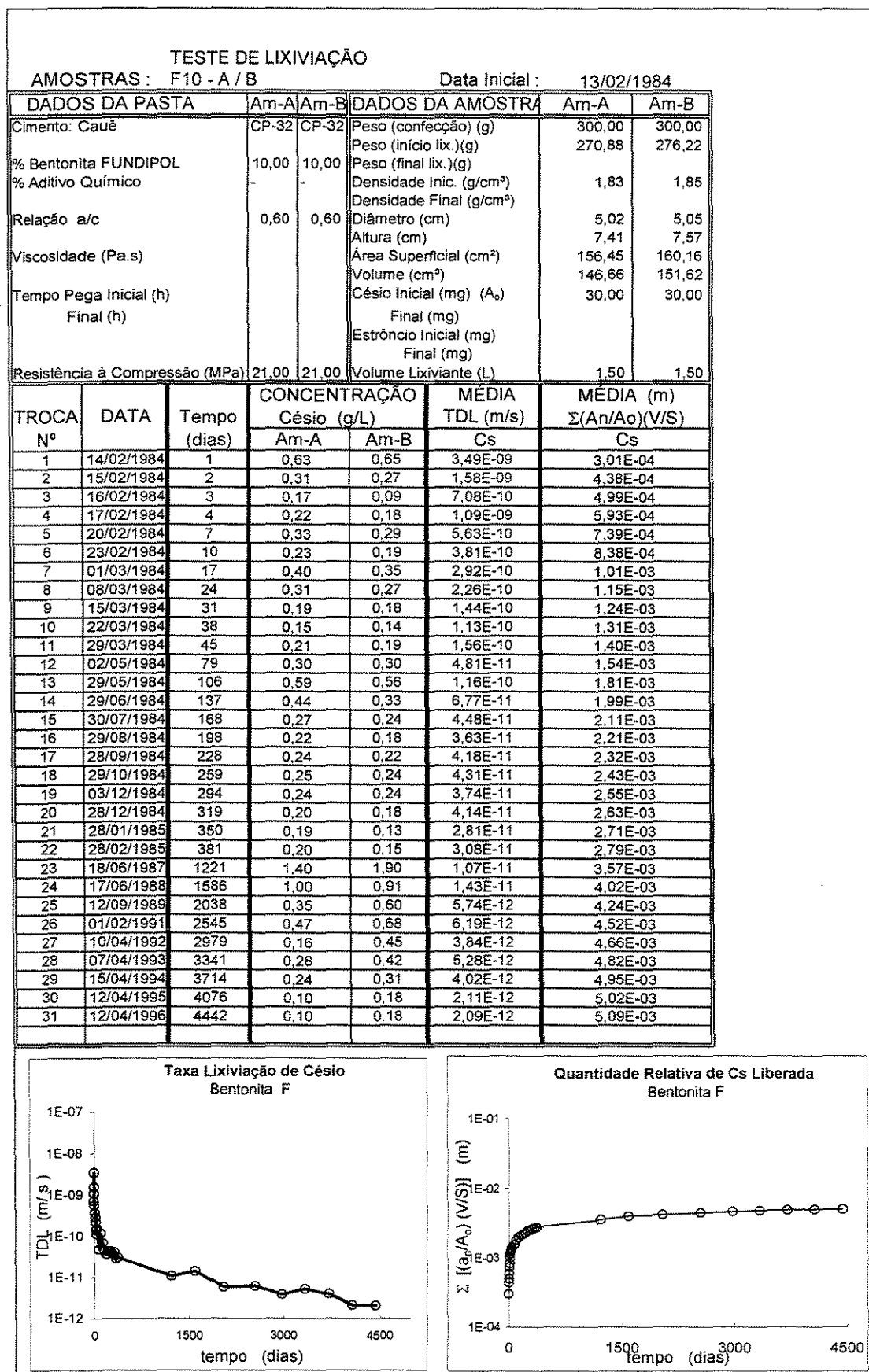
Surface Area. For purposes of this test method, surface area is defined as the geometric surface area of a specimen calculated from its measured dimensions.

Volume. For purposes of this test method, volume is defined as the volume of a specimen calculated from its measured dimensions.

Waste Form. A stable, solid body formed by the waste and solidification agent and meeting specifications for disposal.

ANEXO C – PROTOCOLOS DOS ENSAIOS DE LIXIVIAÇÃO





TESTE DE LIXIVIAÇÃO						
AMOSTRAS : G7 - A/B			Data Inicial: 13/02/84			
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	300,00	300,00
% Bentonita GELPOL		7,00	7,00	Peso (início lix.) (g)	266,64	266,69
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.) (g)		
Relação a/c		0,56	0,56	Densidade Inic. (g/cm³)	1,79	1,81
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)		
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,04	5,05
Final (h)				Altura (cm)	7,47	7,34
Resistência à Compressão (MPa)		17,30	17,30	Área Superficial (cm²)	158,18	156,51
				Volume (cm³)	149,03	147,02
				Césio Inicial (mg) (A ₀)	30,00	30,00
				Final (mg)		
				Estrôncio Inicial (mg)		
				Final (mg)		
				Volume do Lixiviante (L)	1,50	1,50
TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (mg/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) $\Sigma(a_n/A_0)(V/S)$
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	14/02/84	1	0,80	0,74	4,18E-09	3,61E-04
2	15/02/84	2	0,30	0,29	1,61E-09	5,00E-04
3	16/02/84	3	0,10	0,16	7,08E-10	5,61E-04
4	17/02/84	4	0,21	0,18	1,06E-09	6,53E-04
5	20/02/84	7	0,27	0,26	4,81E-10	7,78E-04
6	23/02/84	10	0,20	0,19	3,54E-10	8,69E-04
7	01/03/84	17	0,35	0,35	2,72E-10	1,03E-03
8	08/03/84	24	0,28	0,26	2,10E-10	1,16E-03
9	15/03/84	31	0,16	0,15	1,21E-10	1,23E-03
10	22/03/84	38	0,15	0,14	1,13E-10	1,30E-03
11	29/03/84	45	0,19	0,18	1,44E-10	1,39E-03
12	02/05/84	79	0,19	0,22	3,28E-11	1,49E-03
13	29/05/84	106	0,56	0,58	1,15E-10	1,75E-03
14	29/06/84	137	0,30	0,30	5,27E-11	1,89E-03
15	30/07/84	168	0,23	0,23	4,04E-11	2,00E-03
16	29/08/84	198	0,19	0,19	3,45E-11	2,09E-03
17	28/09/84	228	0,22	0,22	3,99E-11	2,20E-03
18	28/10/84	258	0,24	0,23	4,26E-11	2,31E-03
19	03/12/84	294	0,24	0,22	3,48E-11	2,41E-03
20	28/12/84	319	0,17	0,20	4,03E-11	2,50E-03
21	28/01/85	350	0,19	0,21	3,51E-11	2,60E-03
22	28/02/85	381	0,20	0,23	3,78E-11	2,70E-03
23	18/06/87	1221	1,80	1,80	1,17E-11	3,54E-03
24	17/06/88	1586	0,40	0,96	1,01E-11	3,86E-03
25	13/09/89	2039	0,69	0,79	8,89E-12	4,21E-03
26	30/01/91	2543	0,67	0,65	7,13E-12	4,52E-03
27	10/04/92	2979	0,36	0,41	4,81E-12	4,70E-03
28	07/04/93	3341	0,30	0,34	4,81E-12	4,85E-03
29	15/04/94	3714	0,23	0,23	3,36E-12	4,96E-03
30	12/04/95	4076	0,16	0,18	2,56E-12	5,04E-03
31	12/04/96	4442	0,17	0,14	2,31E-12	5,11E-03

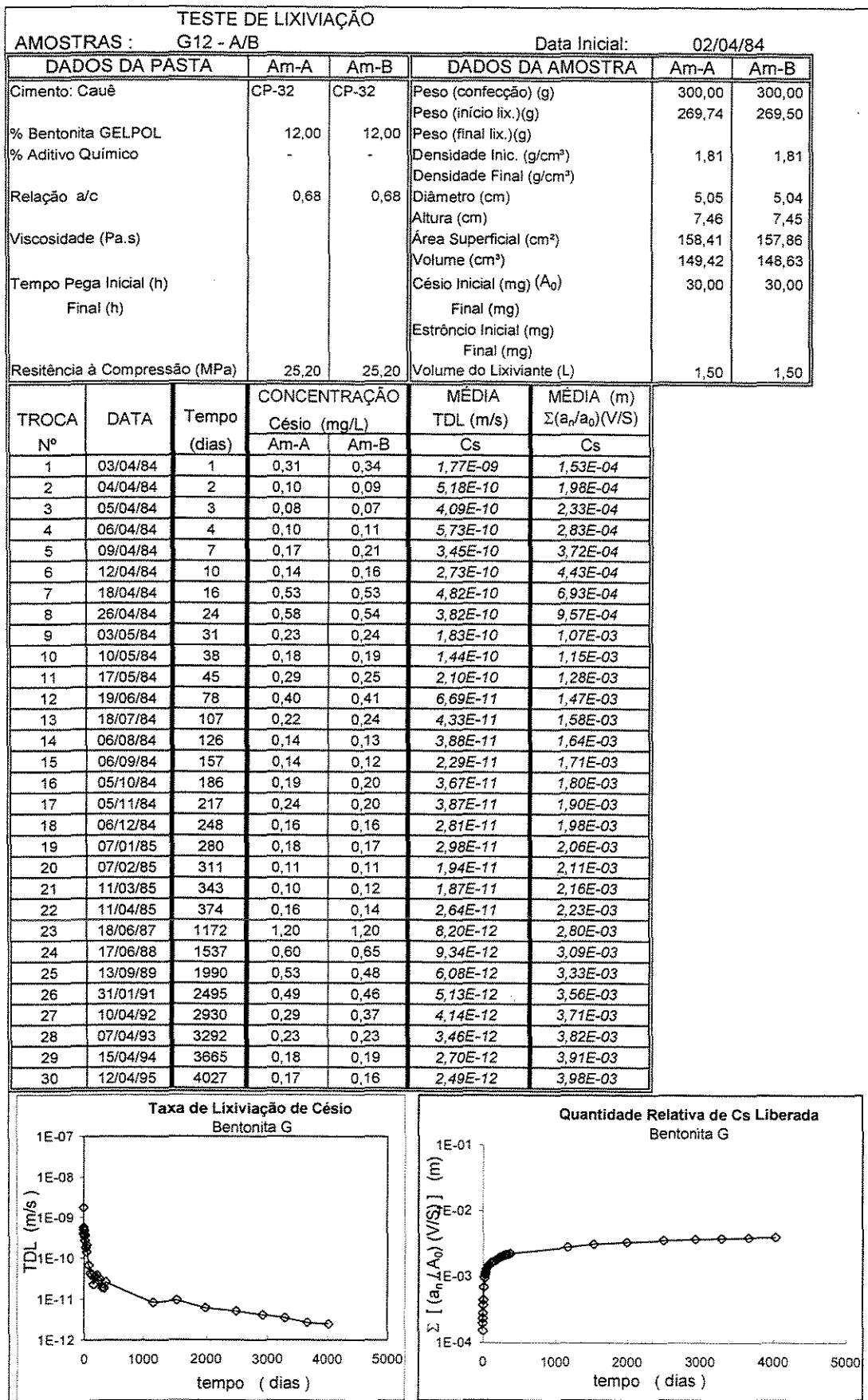
Taxa de Lixiviação de Césio Bentonita G

Quantidade Relativa de Cs Liberada Bentonita G

TESTE DE LIXIVIAÇÃO						
AMOSTRAS : G10 - A/B			Data Inicial: 13/02/84			
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	300,00	300,00
% Bentonita GELPOL		10,00	10,00	Peso (início lix.) (g)	271,83	271,74
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.) (g)		
Relação a/c		0,62	0,62	Densidade Inic. (g/cm³)	1,80	1,83
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)		
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,04	5,02
Final (h)				Altura (cm)	7,57	7,50
Resistência à Compressão (MPa)		21,00	21,00	Área Superficial (cm²)	159,76	157,87
				Volume (cm³)	151,02	148,44
				Césio Inicial (mg) (A ₀)	30,00	30,00
				Final (mg)		
				Estrôncio Inicial (mg)		
				Final (mg)		
				Volume do Lixivante (L)	1,50	1,50
TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO		MÉDIA	MÉDIA (m)
			Am-A	Am-B	TDL (m/s)	$\Sigma(a_r/a_0)(V/S)$
1	14/02/84	1	0,53	0,58	3,03E-09	2,62E-04
2	15/02/84	2	0,23	0,28	1,39E-09	3,82E-04
3	16/02/84	3	0,11	0,16	7,36E-10	4,45E-04
4	17/02/84	4	0,14	0,18	8,73E-10	5,21E-04
5	20/02/84	7	0,23	0,28	4,64E-10	6,41E-04
6	23/02/84	10	0,16	0,18	3,09E-10	7,21E-04
7	01/03/84	17	0,27	0,32	2,30E-10	8,60E-04
8	08/03/84	24	0,21	0,24	1,75E-10	9,66E-04
9	15/03/84	31	0,13	0,15	1,09E-10	1,03E-03
10	22/03/84	38	0,11	0,12	8,96E-11	1,09E-03
11	29/03/84	45	0,17	0,16	1,29E-10	1,16E-03
12	02/05/84	79	0,28	0,28	4,49E-11	1,30E-03
13	29/05/84	106	0,46	0,45	9,19E-11	1,51E-03
14	29/06/84	137	0,24	0,22	4,05E-11	1,62E-03
15	30/07/84	168	0,19	0,21	3,52E-11	1,71E-03
16	29/08/84	198	0,24	0,25	4,46E-11	1,83E-03
17	28/09/84	228	0,17	0,18	3,18E-11	1,91E-03
18	28/10/84	258	0,24	0,23	4,27E-11	2,02E-03
19	03/12/84	294	0,18	0,18	2,73E-11	2,11E-03
20	28/12/84	319	0,14	0,14	3,06E-11	2,17E-03
21	28/01/85	350	0,15	0,17	2,82E-11	2,25E-03
22	28/02/85	381	0,18	0,19	3,26E-11	2,34E-03
23	18/06/87	1221	1,40	1,30	8,77E-12	2,97E-03
24	17/06/88	1586	0,76	0,82	1,18E-11	3,34E-03
25	13/09/89	2039	0,74	0,80	9,27E-12	3,71E-03
26	30/01/91	2543	0,63	0,52	6,23E-12	3,98E-03
27	10/04/92	2979	0,46	0,49	5,94E-12	4,20E-03
28	07/04/93	3341	0,31	0,38	5,20E-12	4,36E-03
29	15/04/94	3714	0,27	0,26	3,88E-12	4,49E-03
30	12/04/95	4076	0,24	0,20	3,32E-12	4,59E-03

Taxa de Lixiviação de Césio
Bentonita G

Quantidade Relativa de Cs Liberada
Bentonita G



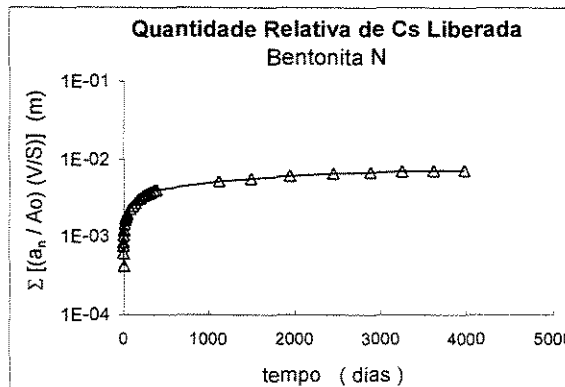
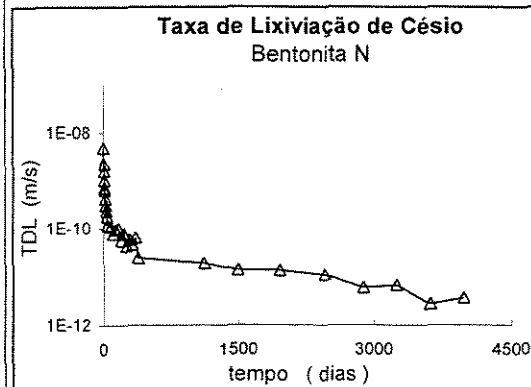
TESTE DE LIXIVIAÇÃO						
AMOSTRAS: G15 - A/B			Data Inicial: 02/04/84			
DADOS DA PASTA	Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		Am-A	Am-B
Cimento: Cauê	CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	261,00	261,00	
% Bentonita GELPOL	15,00	15,00	Peso (início lix.) (g)	258,91	259,29	
% Aditivo Químico	-	-	Peso (final lix.) (g)			
Relação a/c	0,81	0,81	Densidade Inic. (g/cm³)	1,74	1,72	
Viscosidade (Pa.s)			Densidade Final (g/cm³)			
Tempo Pega Inicial (h)			Diâmetro (cm)	5,04	5,05	
Final (h)			Altura (cm)	7,45	7,51	
Resistência à Compressão (MPa)	18,90	18,90	Área Superficial (cm²)	157,86	159,21	
			Volume (cm³)	148,63	150,42	
			Césio Inicial (mg) (A₀)	30,00	30,00	
			Final (mg)			
			Estrôncio Inicial (mg)			
			Final (mg)			
			Volume do Lixiviante (L)	1,50	1,50	

TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (mg/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) $\Sigma(a_n/a_0)(V/S)$
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	03/04/84	1	0,41	0,44	2,32E-09	2,00E-04
2	04/04/84	2	0,11	0,13	6,55E-10	2,57E-04
3	05/04/84	3	0,08	0,10	4,91E-10	2,81E-04
4	06/04/84	4	0,14	0,14	7,64E-10	3,14E-04
5	09/04/84	7	0,25	0,24	4,46E-10	3,70E-04
6	12/04/84	10	0,19	0,19	3,46E-10	4,15E-04
7	18/04/84	16	0,45	0,47	4,18E-10	5,25E-04
8	26/04/84	24	0,58	0,57	3,92E-10	6,60E-04
9	03/05/84	31	0,32	0,30	2,42E-10	7,30E-04
10	10/05/84	38	0,26	0,27	2,07E-10	7,94E-04
11	17/05/84	45	0,30	0,30	2,34E-10	8,64E-04
12	19/06/84	78	0,55	0,55	9,10E-11	9,94E-04
13	18/07/84	107	0,31	0,30	5,74E-11	1,06E-03
14	06/08/84	126	0,21	0,20	5,89E-11	1,11E-03
15	06/09/84	157	0,20	0,20	3,52E-11	1,16E-03
16	05/10/84	186	0,24	0,25	4,61E-11	1,22E-03
17	05/11/84	217	0,30	0,30	5,28E-11	1,29E-03
18	06/12/84	248	0,19	0,19	3,35E-11	1,33E-03
19	07/01/85	280	0,22	0,22	3,75E-11	1,38E-03
20	07/02/85	311	0,14	0,14	2,46E-11	1,42E-03
21	11/03/85	343	0,13	0,13	2,22E-11	1,45E-03
22	11/04/85	374	0,17	0,18	3,08E-11	1,49E-03
23	18/06/87	1172	1,10	1,30	8,21E-12	1,80E-03
24	17/06/88	1537	0,68	0,67	1,01E-11	1,95E-03
25	13/09/89	1990	0,57	0,52	6,57E-12	2,08E-03
26	31/01/91	2495	0,43	0,40	4,49E-12	2,17E-03
27	10/04/92	2930	0,34	0,32	4,14E-12	2,25E-03
28	07/04/93	3292	0,28	0,26	4,07E-12	2,31E-03
29	15/04/94	3665	0,18	0,18	2,63E-12	2,35E-03
30	12/04/95	4027	0,10	0,15	1,89E-12	2,38E-03

Taxa de Lixiviação de Césio
Bentonita G

Quantidade Relativa de Cs Liberada
Bentonita G

TESTE DE LIXIVIAÇÃO						
AMOSTRAS : N7-A/B			Data Inicial: 21/05/84			
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	300,00	300,00
% Bentonita NATURAL		7,00	7,00	Peso (início lix.) (g)	288,58	290,78
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.) (g)		
Relação a/c		0,48	0,48	Densidade Inic. (g/cm³)	1,94	1,94
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)		
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,09	5,05
Final (h)				Altura (cm)	7,47	7,51
Resistência à Compressão (MPa)		15,10	15,10	Área Superficial (cm²)	160,15	159,21
				Volume (cm³)	152,00	150,42
				Cesio Inicial (mg) (Ao)	30,00	29,90
				Final (mg)		
				Estrôncio Inicial (mg)		
				Final (mg)		
				Vol. Lixivante (L)	1,50	1,50
TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO		MÉDIA	MÉDIA (m)
			Césio (g/L)		TDL (m/s)	$\Sigma(A_n/A_o)(V/S)$
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	22/05/84	1	0,87	0,90	4,86E-09	4,20E-04
2	23/05/84	2	0,40	0,42	2,25E-09	6,14E-04
3	24/05/84	3	0,28	0,31	1,62E-09	7,54E-04
4	25/05/84	4	0,19	0,19	1,04E-09	8,44E-04
5	28/05/84	7	0,38	0,40	7,14E-10	1,03E-03
6	31/05/84	10	0,32	0,36	6,22E-10	1,19E-03
7	07/06/84	17	0,52	0,55	4,20E-10	1,44E-03
8	14/06/84	24	0,38	0,40	3,06E-10	1,63E-03
9	20/06/84	30	0,25	0,26	2,33E-10	1,75E-03
10	28/06/84	38	0,26	0,26	1,78E-10	1,87E-03
11	05/07/84	45	0,15	0,15	1,18E-10	1,94E-03
12	10/08/84	81	0,68	0,74	1,08E-10	2,28E-03
13	10/09/84	112	0,45	0,44	7,88E-11	2,49E-03
14	10/10/84	142	0,53	0,50	9,42E-11	2,74E-03
15	09/11/84	172	0,55	0,55	1,01E-10	3,00E-03
16	10/12/84	203	0,34	0,30	5,67E-11	3,15E-03
17	10/01/85	234	0,45	0,44	7,88E-11	3,36E-03
18	11/02/85	266	0,25	0,25	4,29E-11	3,48E-03
19	14/03/85	297	0,34	0,32	5,84E-11	3,64E-03
20	15/04/85	329	0,27	0,27	4,63E-11	3,76E-03
21	20/05/85	364	0,42	0,40	6,43E-11	3,96E-03
22	17/06/85	392	0,13	0,12	2,45E-11	4,02E-03
23	18/06/87	1123	2,60	2,50	1,91E-11	5,23E-03
24	17/06/88	1488	0,86	0,98	1,38E-11	5,66E-03
25	12/09/89	1940	1,20	0,99	1,33E-11	6,18E-03
26	31/01/91	2446	1,10	0,90	1,08E-11	6,66E-03
27	10/04/92	2881	0,49	0,44	5,87E-12	6,88E-03
28	07/04/93	3243	0,42	0,46	6,67E-12	7,09E-03
29	15/04/94	3616	0,10	0,27	2,72E-12	7,17E-03
30	12/04/95	3978	0,24	0,24	3,64E-12	7,29E-03



TESTE DE LIXIVIAÇÃO							
AMOSTRAS : N 10-A/B			Data Inicial : 21/05/84				
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		Am-A	Am-B
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	300,00	300,00	
% Bentonita NATURAL		10,00	10,00	Peso (início lix.) (g)	275,09	278,08	
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.) (g)			
Relação a/c		0,58	0,58	Densidade Inic. (g/cm³)	1,83	1,85	
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)			
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,05	5,05	
Final (h)				Altura (cm)	7,50	7,52	
Resistência à Compressão (MPa)		14,40	14,40	Área Superficial (cm²)	159,05	159,36	
				Volume (cm³)	150,22	150,62	
				Césio Inicial (mg) (Ao)	30,00	30,00	
				Final (mg)			
				Estrôncio Inicial (mg)			
				Final (mg)			
				Vol. Lixiviante (L)	1,50	1,50	

TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (g/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) Σ(An/Ao)(V/S)
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	22/05/84	1	0,93	0,92	5,06E-09	4,37E-04
2	23/05/84	2	0,40	0,39	2,16E-09	6,24E-04
3	24/05/84	3	0,28	0,27	1,50E-09	7,53E-04
4	25/05/84	4	0,19	0,18	1,01E-09	8,41E-04
5	28/05/84	7	0,37	0,37	6,74E-10	1,02E-03
6	31/05/84	10	0,33	0,31	5,83E-10	1,17E-03
7	07/06/84	17	0,52	0,53	4,10E-10	1,41E-03
8	14/06/84	24	0,40	0,41	3,16E-10	1,61E-03
9	20/06/84	30	0,26	0,28	2,46E-10	1,73E-03
10	28/06/84	38	0,27	0,27	1,85E-10	1,86E-03
11	05/07/84	45	0,17	0,16	1,29E-10	1,94E-03
12	10/08/84	81	0,78	0,81	1,21E-10	2,31E-03
13	10/09/84	112	0,44	0,43	7,67E-11	2,52E-03
14	10/10/84	142	0,52	0,51	9,39E-11	2,76E-03
15	09/11/84	172	0,55	0,50	9,57E-11	3,01E-03
16	10/12/84	203	0,33	0,29	5,47E-11	3,16E-03
17	10/01/85	234	0,40	0,40	7,06E-11	3,35E-03
18	11/02/85	266	0,23	0,20	3,67E-11	3,45E-03
19	14/03/85	297	0,27	0,30	5,03E-11	3,58E-03
20	15/04/85	329	0,21	0,22	3,67E-11	3,68E-03
21	20/05/85	364	0,34	0,35	5,39E-11	3,85E-03
22	17/06/85	392	0,19	0,18	3,61E-11	3,94E-03
23	18/06/87	1123	1,90	2,00	1,46E-11	4,86E-03
24	17/06/88	1488	1,10	1,20	1,72E-11	5,40E-03
25	12/09/89	1940	1,00	0,96	1,19E-11	5,86E-03
26	31/01/91	2446	0,88	0,85	9,35E-12	6,27E-03
27	10/04/92	2881	0,44	0,46	5,66E-12	6,48E-03
28	07/04/93	3243	0,45	0,40	6,42E-12	6,68E-03
29	15/04/94	3616	0,24	0,24	3,52E-12	6,80E-03
30	12/04/95	3978	0,24	0,24	3,63E-12	6,91E-03

Taxa de Lixiviação de Cs
Bentonita N

Quantidade Relativa de Cs Liberada
Bentonita N

TESTE DE LIXIVIAÇÃO							
AMOSTRAS : N12-B/C			Data Inicial : 15/10/84				
DADOS DA PASTA		Am-B	Am-C	DADOS DA AMOST		Am-B	Am-C
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	262,71	267,25	
% Bentonita NATURAL		12,00	12,00	Peso (início lix.)(g)	260,91	266,40	
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.)(g)			
Relação a/c		0,64	0,64	Densidade Inic. (g/cm³)	1,76	1,77	
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)			
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,05	5,05	
Final (h)				Altura (cm)	7,40	7,53	
Resistência à Compressão (MPa)		9,84	9,84	Área Superficial (cm²)	157,46	159,52	
				Volume (cm³)	148,22	150,82	
				Cesio Inicial (mg) (Ao)	27,10	27,60	
				Final (mg)			
				Estrôncio Inicial (mg)			
				Final (mg)			
				Vol. Lixivante (L)	1,50	1,50	

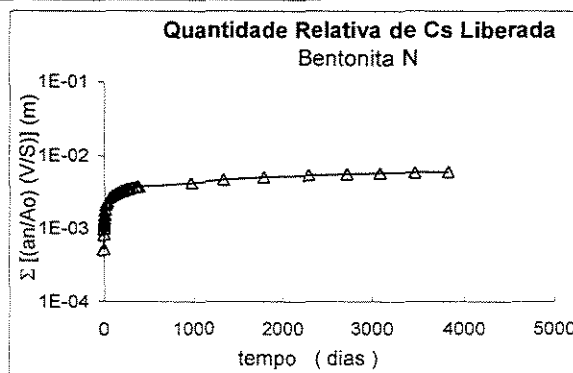
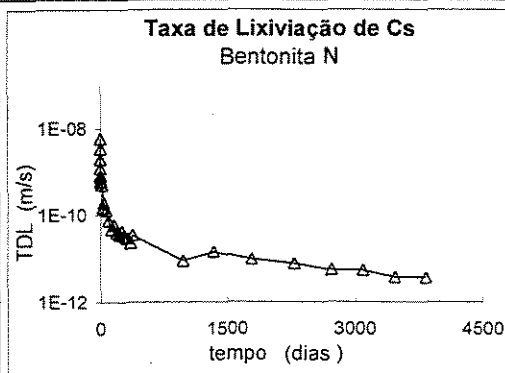
TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (g/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) Σ(An/Ao)(V/S)
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	16/10/84	1	1,00	1,00	5,99E-09	5,17E-04
2	17/10/84	2	0,58	0,59	3,50E-09	8,20E-04
3	18/10/84	3	0,33	0,34	2,01E-09	9,93E-04
4	19/10/84	4	0,21	0,21	1,26E-09	1,10E-03
5	20/10/84	5	0,14	0,14	8,38E-10	1,17E-03
6	22/10/84	7	0,25	0,25	7,49E-10	1,30E-03
7	26/10/84	11	0,40	0,40	5,99E-10	1,51E-03
8	31/10/84	16	0,55	0,50	6,29E-10	1,78E-03
9	07/11/84	23	0,60	0,60	5,13E-10	2,09E-03
10	14/11/84	30	0,17	0,18	1,50E-10	2,18E-03
11	21/11/84	37	0,23	0,23	1,97E-10	2,30E-03
12	21/12/84	67	0,65	0,68	1,33E-10	2,65E-03
13	21/01/85	98	0,39	0,40	7,63E-11	2,85E-03
14	21/02/85	129	0,24	0,24	4,64E-11	2,98E-03
15	25/03/85	161	0,38	0,26	6,00E-11	3,14E-03
16	29/04/85	196	0,23	0,23	3,94E-11	3,26E-03
17	27/05/85	224	0,18	0,15	3,53E-11	3,35E-03
18	27/06/85	255	0,21	0,24	4,37E-11	3,46E-03
19	29/07/85	287	0,17	0,18	3,27E-11	3,55E-03
20	29/08/85	318	0,18	0,13	3,00E-11	3,63E-03
21	07/10/85	357	0,17	0,13	2,31E-11	3,71E-03
22	30/10/85	380	0,14	0,13	3,52E-11	3,78E-03
23	18/06/87	976	0,76	1,00	8,83E-12	4,24E-03
24	17/06/88	1341	0,79	0,93	1,41E-11	4,68E-03
25	12/09/89	1793	0,76	0,70	9,67E-12	5,06E-03
26	31/01/91	2299	0,61	0,68	7,63E-12	5,39E-03
27	10/04/92	2734	0,40	0,40	5,51E-12	5,60E-03
28	07/04/93	3096	0,32	0,32	5,29E-12	5,76E-03
29	15/04/94	3469	0,24	0,23	3,77E-12	5,89E-03
30	12/04/95	3831	0,21	0,23	3,64E-12	6,00E-03

Taxa de Lixiviação de Cs
Bentonita N

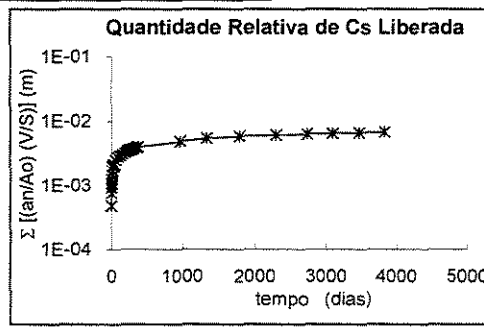
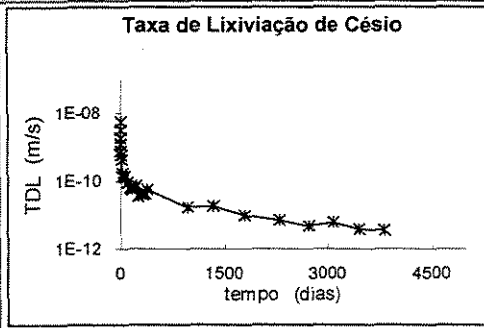
Y-axis: TDL (m/s)
X-axis: tempo (dias)

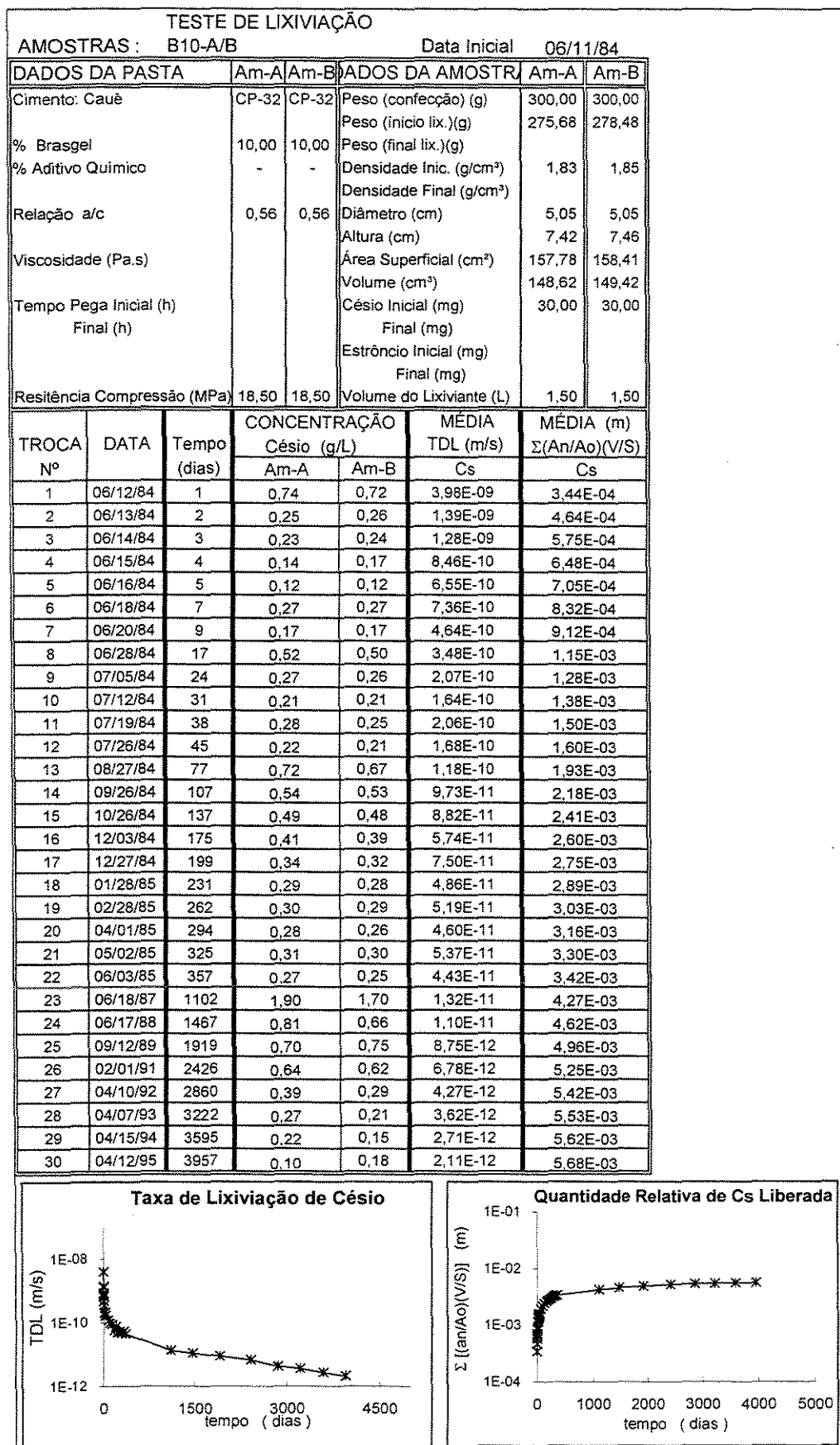
Quantidade Relativa de Cs Liberada
Bentonita N

Y-axis: Σ [(an/Ao) (V/S)] (m)
X-axis: tempo (dias)



TESTE DE LIXIVIAÇÃO						
AMOSTRAS : B7-B/C			Data Inicial: 15/10/1984			
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA		Am-C
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	280,87	289,78
% Brasgel		7,00	7,00	Peso (início lix.) (g)	279,03	288,62
% Aditivo Químico		-	-	Peso (final lix.) (g)		
Relação a/c		0,49	0,49	Densidade Inic. (g/cm³)	1,94	1,94
Viscosidade (Pa.s)				Densidade Final (g/cm³)		
Tempo Pega Inicial (h)				Diâmetro (cm)	5,05	5,07
Final (h)				Altura (cm)	7,43	7,60
Resistência Compressão (MPa)		12,00	12,00	Área Superficial (cm²)	157,94	161,43
				Volume (cm³)	148,82	153,43
				Césio Inicial (mg)	29,00	29,90
				Final (mg)		
				Estrôncio Inicial (mg)		
				Final (mg)		
				Volume do Lixivante (L)	1,50	1,50
TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (g/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) $\Sigma (An/Ao)(V/S)$
			Am-B	Am-C	Cs	Cs
1	10/16/84	1	1,00	1,00	5,58E-09	4,82E-04
2	10/17/84	2	0,56	0,61	3,26E-09	7,64E-04
3	10/18/84	3	0,34	0,34	1,90E-09	9,28E-04
4	10/19/84	4	0,22	0,23	1,26E-09	1,04E-03
5	10/20/84	5	0,14	0,14	7,81E-10	1,10E-03
6	10/22/84	7	0,27	0,29	7,81E-10	1,24E-03
7	10/26/84	11	0,42	0,43	5,93E-10	1,44E-03
8	10/31/84	16	0,55	0,50	5,86E-10	1,70E-03
9	11/07/84	23	0,55	0,55	4,38E-10	1,96E-03
10	11/14/84	30	0,17	0,18	1,39E-10	2,05E-03
11	11/21/84	37	0,22	0,22	1,75E-10	2,15E-03
12	12/21/84	67	0,70	0,72	1,32E-10	2,49E-03
13	01/21/85	98	0,53	0,47	9,01E-11	2,74E-03
14	02/21/85	129	0,34	0,37	6,39E-11	2,91E-03
15	03/25/85	161	0,41	0,26	5,86E-11	3,07E-03
16	04/29/85	196	0,41	0,38	6,30E-11	3,26E-03
17	05/27/85	224	0,38	0,38	7,57E-11	3,44E-03
18	06/27/85	255	0,20	0,19	3,51E-11	3,54E-03
19	07/29/85	287	0,24	0,26	4,36E-11	3,66E-03
20	08/29/85	318	0,24	0,21	4,05E-11	3,77E-03
21	10/07/85	357	0,29	0,29	4,15E-11	3,91E-03
22	10/30/85	380	0,24	0,23	5,70E-11	4,02E-03
23	06/18/87	976	1,80	1,80	1,69E-11	4,89E-03
24	06/17/88	1341	1,20	1,20	1,83E-11	5,47E-03
25	09/12/89	1793	0,84	0,75	9,82E-12	5,85E-03
26	02/01/91	2300	0,90	0,38	7,08E-12	6,16E-03
27	04/10/92	2734	0,30	0,44	4,75E-12	6,34E-03
28	04/07/93	3096	0,41	0,39	6,17E-12	6,53E-03
29	04/15/94	3469	0,29	0,23	3,89E-12	6,65E-03
30	04/12/95	3831	0,23	0,23	3,55E-12	6,77E-03





TESTE DE LIXIVIAÇÃO

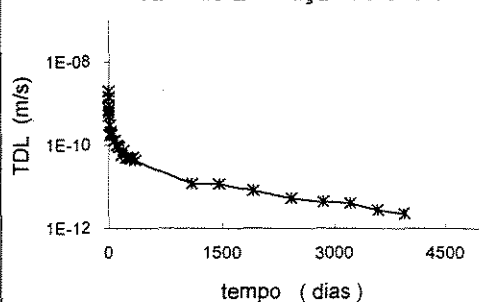
AMOSTRAS : B12-A/B

Data Inicial : 06/11/84

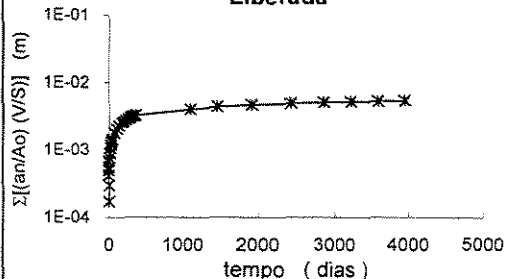
DADOS DA PASTA	Am-A	Am-B	DADOS DA AMOSTRA	Am-B	Am-C
Cimento: Cauê	CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)	300,00	300,00
% Brasgel	12,00	12,00	Peso (início lix.) (g)	274,39	271,12
% Aditivo Químico	-	-	Peso (final lix.) (g)		
Relação a/c	0,61	0,61	Densidade Inic. (g/cm³)	1,76	1,77
Viscosidade (Pa.s)			Densidade Final (g/cm³)		
Tempo Pega Inicial (h)			Diâmetro (cm)	5,06	5,04
Final (h)			Altura (cm)	7,43	7,41
Resistência Compressão (MPa)	14,30	14,30	Área Superficial (cm²)	158,33	157,23
			Volume (cm³)	149,41	147,83
			Césio Inicial (mg)	30,00	30,00
			Final (mg)		
			Estrôncio Inicial (mg)		
			Final (mg)		
			Volume do Lixivante (L)	1,50	1,50

TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (g/L)		MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) $\Sigma(A_n/A_o)(V/S)$
			Am-A	Am-B	Cs	Cs
1	06/12/84	1	0,73	0,00	1,99E-09	1,72E-04
2	06/13/84	2	0,26	0,27	1,44E-09	2,97E-04
3	06/14/84	3	0,25	0,26	1,39E-09	4,17E-04
4	06/15/84	4	0,17	0,17	9,27E-10	4,97E-04
5	06/16/84	5	0,12	0,11	6,27E-10	5,51E-04
6	06/18/84	7	0,27	0,26	7,22E-10	6,76E-04
7	06/20/84	9	0,18	0,19	5,04E-10	7,63E-04
8	06/28/84	17	0,51		1,74E-10	8,84E-04
9	07/05/84	24	0,27	0,51	3,04E-10	1,07E-03
10	07/12/84	31	0,23	0,28	1,99E-10	1,19E-03
11	07/19/84	38	0,27	0,28	2,14E-10	1,32E-03
12	07/26/84	45	0,23	0,23	1,79E-10	1,43E-03
13	08/27/84	77	0,77	0,76	1,30E-10	1,79E-03
14	09/26/84	107	0,53	0,58	1,01E-10	2,05E-03
15	10/26/84	137	0,50	0,51	9,18E-11	2,28E-03
16	12/03/84	175	0,41	0,40	5,81E-11	2,48E-03
17	12/27/84	199	0,33	0,33	7,50E-11	2,63E-03
18	01/28/85	231	0,29	0,29	4,94E-11	2,77E-03
19	02/28/85	262	0,29	0,28	5,01E-11	2,90E-03
20	04/01/85	294	0,28	0,27	4,68E-11	3,03E-03
21	05/02/85	325	0,30	0,29	5,19E-11	3,17E-03
22	06/03/85	357	0,26	0,25	4,34E-11	3,29E-03
23	06/18/87	1102	1,60	1,60	1,17E-11	4,04E-03
24	06/17/88	1467	0,81	0,73	1,15E-11	4,41E-03
25	09/12/89	1919	0,71	0,62	8,02E-12	4,72E-03
26	02/01/91	2426	0,42	0,56	5,27E-12	4,95E-03
27	04/10/92	2860	0,41	0,29	4,40E-12	5,12E-03
28	04/07/93	3222	0,26	0,27	3,99E-12	5,24E-03
29	04/15/94	3595	0,18	0,20	2,78E-12	5,33E-03
30	04/12/95	3957	0,14	0,16	2,26E-12	5,40E-03

Taxa de Lixiviação de Césio



Quantidade Relativa de Cs Liberada



TESTE DE LIXIVIAÇÃO									
AMOSTRAS : B11-A/B/C					Data Inicial : 02/09/85				
DADOS DA PASTA		Am-A	Am-B	Am-C	DADOS DA AMOSTRA		Am-A	Am-B	Am-C
Cimento: Cauê		CP-32	CP-32	CP-32	Peso (confeção) (g)				
Aditivo (%)		-	-	-	Peso (início lix.) (g)	311,53	313,38	300,58	
% Aditivo Químico		-	-	-	Peso (final lix.) (g)				
Relação a/c		0,35	0,35	0,35	Densidade Inic. (g/cm³)	2,06	2,07	2,04	
Viscosidade (Pa.s)		-	-	-	Densidade Final (g/cm³)				
Tempo Pega Inicial (h)		-	-	-	Diâmetro (cm)	5,09	5,07	5,09	
Final (h)		-	-	-	Altura (cm)	7,45	7,49	7,23	
Resistência à Compressão (MPa)		11,20	11,20	11,20	Área Superficial (cm²)	159,83	159,68	156,31	
					Volume (cm³)	151,59	151,21	147,12	
					Cesio Inicial (mg)	30,00	30,00	30,00	
					Final (mg)				
					Estrôncio Inicial (mg)	30,00	30,00	30,00	
					Final (mg)				
					Vol. Lixivante (L)	1,50	1,50	1,50	

TROCA Nº	DATA	Tempo (dias)	CONCENTRAÇÃO Césio (g/l)			MÉDIA TDL (m/s)	MÉDIA (m) $\Sigma(An/Ao)(V/S)$
			Am-A	Am-B	Am-C	Cs	Cs
1	03/09/85	1	1,80	2,00	1,80	1,02E-08	8,83E-04
2	04/09/85	2	0,46	0,53	0,46	2,64E-09	1,11E-03
3	05/09/85	3	0,45	0,49	0,46	2,55E-09	1,33E-03
4	06/09/85	4	0,29	0,33	0,30	1,68E-09	1,48E-03
5	07/09/85	5	0,25	0,27	0,26	1,42E-09	1,60E-03
6	09/09/85	7	0,44	0,46	0,44	1,22E-09	1,81E-03
7	12/09/85	10	0,46	0,48	0,45	8,45E-10	2,03E-03
8	19/09/85	17	0,84	0,88	0,85	6,70E-10	2,43E-03
9	26/09/85	24	0,48	0,46	0,46	3,65E-10	2,66E-03
10	04/10/85	32	0,51	0,55	0,54	3,65E-10	2,91E-03
11	10/10/85	38	0,35	0,37	0,37	3,31E-10	3,08E-03
12	11/11/85	70	1,03	1,03	1,06	1,78E-10	3,57E-03
13	12/12/85	101	0,85	0,92	0,80	1,51E-10	3,98E-03
14	13/01/86	133	0,84	0,80	0,83	1,41E-10	4,37E-03
15	13/02/86	164	0,75	0,80	0,74	1,35E-10	4,73E-03
16	14/03/86	193	0,67	0,63	0,63	1,21E-10	5,03E-03
17	14/04/86	224	0,68	0,67	0,72	1,22E-10	5,36E-03
18	14/05/86	254	0,50	0,47	0,48	8,82E-11	5,59E-03
19	16/06/86	287	0,49	0,48	0,49	8,07E-11	5,82E-03
20	14/07/86	315	0,48	0,43	0,44	8,79E-11	6,03E-03
21	13/08/86	345	0,43	0,40	0,35	7,18E-11	6,21E-03
22	15/09/86	378	0,45	0,46	0,43	7,41E-11	6,43E-03
23	18/06/87	654	2,50	2,50	2,40	4,89E-11	7,59E-03
24	17/07/88	1049	2,10	2,10	2,10	2,91E-11	8,58E-03
25	13/09/89	1472	1,40	1,40	1,50	1,85E-11	9,26E-03
26	18/06/90	1750	0,42	0,38	0,39	7,81E-12	9,45E-03
27	17/06/91	2114	0,41	0,37	0,38	5,81E-12	9,63E-03
28	17/06/92	2480	1,60	1,50	1,50	2,29E-11	1,04E-02
29	17/06/93	2845	0,10	0,10	0,10	1,50E-12	1,04E-02
30	20/06/94	3213	0,10	0,10	0,10	1,49E-12	1,05E-02

Obs. todo o Cesio foi lixiviado ate a troca 28 .

**ANEXO D – RESULTADOS DO PROCESSAMENTO
DOS DADOS DE LIXIVIAÇÃO PELO
PROGRAMA ALT.**

Amostra B-A (Branco) - Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	9.00E-02	9.00E-02
2	2.00	2.30E-02	1.13E-01
3	3.00	2.25E-02	1.35E-01
4	4.00	1.45E-02	1.50E-01
5	5.00	1.25E-02	1.63E-01
6	7.00	2.20E-02	1.85E-01
7	10.00	2.30E-02	2.08E-01
8	17.00	4.20E-02	2.50E-01
9	24.00	2.40E-02	2.73E-01
10	32.00	2.55E-02	2.99E-01
11	38.00	1.75E-02	3.17E-01
12	70.00	5.15E-02	3.68E-01
13	101.00	4.25E-02	4.10E-01
14	133.00	4.20E-02	4.52E-01
15	164.00	3.75E-02	4.90E-01
16	193.00	3.35E-02	5.23E-01
17	224.00	3.40E-02	5.57E-01
18	254.00	2.50E-02	5.82E-01
19	287.00	2.45E-02	6.07E-01
20	315.00	2.40E-02	6.31E-01
21	345.00	2.15E-02	6.52E-01
22	378.00	2.25E-02	6.75E-01
23	654.00	1.25E-01	8.00E-01
24	%1049	1.05E-01	9.05E-01
25	%1472	7.00E-02	9.75E-01
26	%1750	2.10E-02	9.96E-01
27	%2114	2.05E-02	1.02E+00
28	%2480	8.00E-02	1.10E+00
29	%2845	5.00E-03	1.10E+00
30	%3213	5.00E-03	1.11E+00

Diffusion Model

Diffusion coefficient =1.79E-08

Y-axis intercept = 3.27E-02

relative error in fit = 4.13 %

Dissolution Model

standard deviation=2.82E-02

average IFL=3.55E-02

variance= 79.47

Partition Model

Diffusion coefficient =1.79E-08

Partition Constant =1.00

relative error in fit = 4.13 %

Amostra B-B (Branco) - Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	1.00E-01	1.00E-01
2	2.00	2.65E-02	1.26E-01
3	3.00	2.45E-02	1.51E-01
4	4.00	1.65E-02	1.67E-01
5	5.00	1.35E-02	1.81E-01
6	7.00	2.30E-02	2.04E-01
7	10.00	2.40E-02	2.28E-01
8	17.00	4.40E-02	2.72E-01
9	24.00	2.30E-02	2.95E-01
10	32.00	2.75E-02	3.22E-01
11	38.00	1.85E-02	3.41E-01
12	70.00	5.15E-02	3.92E-01
13	101.00	4.60E-02	4.38E-01
14	133.00	4.00E-02	4.78E-01
15	164.00	4.00E-02	5.18E-01
16	193.00	3.15E-02	5.50E-01
17	224.00	3.35E-02	5.83E-01
18	254.00	2.35E-02	6.07E-01
19	287.00	2.40E-02	6.31E-01
20	315.00	2.15E-02	6.52E-01
21	345.00	2.00E-02	6.72E-01
22	378.00	2.30E-02	6.95E-01
23	654.00	1.25E-01	8.20E-01
24	%1049	1.05E-01	9.25E-01
25	%1472	7.00E-02	9.95E-01
26	%1750	1.90E-02	1.01E+00
27	%2114	1.85E-02	1.03E+00
28	%2480	7.50E-02	1.11E+00
29	%2845	5.00E-03	1.11E+00
30	%3213	5.00E-03	1.12E+00

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 2.01E-08

Y-axis intercept = 3.36E-02

relative error in fit = 5.36 %

Dissolution Model

standard deviation= 2.80E-02

average IFL= 3.54E-02

variance= 79.03

Partition Model

Diffusion coefficient = 2.01E-08

Partition Constant = 1.00

relative error in fit = 5.36 %

Amostra B-C (Branco) - Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	9.00E-02	9.00E-02
2	2.00	2.30E-02	1.13E-01
3	3.00	2.30E-02	1.36E-01
4	4.00	1.50E-02	1.51E-01
5	5.00	1.30E-02	1.64E-01
6	7.00	2.20E-02	1.86E-01
7	10.00	2.25E-02	2.08E-01
8	17.00	4.25E-02	2.51E-01
9	24.00	2.30E-02	2.74E-01
10	32.00	2.70E-02	3.01E-01
11	38.00	1.85E-02	3.19E-01
12	70.00	5.30E-02	3.73E-01
13	101.00	4.00E-02	4.12E-01
14	133.00	4.15E-02	4.54E-01
15	164.00	3.70E-02	4.91E-01
16	193.00	3.15E-02	5.22E-01
17	224.00	3.60E-02	5.58E-01
18	254.00	2.40E-02	5.82E-01
19	287.00	2.45E-02	6.07E-01
20	315.00	2.20E-02	6.29E-01
21	345.00	1.75E-02	6.46E-01
22	378.00	2.15E-02	6.68E-01
23	654.00	1.20E-01	7.88E-01
24	%1049	1.05E-01	8.93E-01
25	%1472	7.50E-02	9.68E-01
26	%1750	1.95E-02	9.88E-01
27	%2114	1.90E-02	1.01E+00
28	%2480	7.50E-02	1.08E+00
29	%2845	5.00E-03	1.09E+00
30	%3213	5.00E-03	1.09E+00

Diffusion Model

Diffusion coefficient =1.74E-08

Y-axis intercept = 3.14E-02

relative error in fit = 3.57 %

Dissolution Model

standard deviation=2.78E-02

average IFL=3.49E-02

variance= 79.44

Partition Model

Diffusion coefficient =1.74E-08

Partition Constant =1.00

relative error in fit = 3.57 %

Amostra G7-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	4.00E-02	4.00E-02
2	2.00	1.50E-02	5.50E-02
3	3.00	5.00E-03	6.00E-02
4	4.00	1.05E-02	7.05E-02
5	7.00	1.35E-02	8.40E-02
6	10.00	1.00E-02	9.40E-02
7	17.00	1.75E-02	1.12E-01
8	24.00	1.40E-02	1.26E-01
9	31.00	8.00E-03	1.34E-01
10	38.00	7.50E-03	1.41E-01
11	45.00	9.50E-03	1.50E-01
12	79.00	9.50E-03	1.60E-01
13	106.00	2.80E-02	1.88E-01
14	137.00	1.50E-02	2.03E-01
15	168.00	1.15E-02	2.14E-01
16	198.00	9.50E-03	2.24E-01
17	228.00	1.10E-02	2.35E-01
18	258.00	1.20E-02	2.47E-01
19	294.00	1.20E-02	2.59E-01
20	319.00	8.50E-03	2.67E-01
21	350.00	9.50E-03	2.77E-01
22	381.00	1.00E-02	2.87E-01
23	%1221	9.00E-02	3.77E-01
24	%1586	2.00E-02	3.97E-01
25	%2039	3.45E-02	4.31E-01
26	%2543	3.35E-02	4.65E-01
27	%2979	1.80E-02	4.83E-01
28	%3341	1.50E-02	4.98E-01
29	%3714	1.15E-02	5.09E-01
30	%4076	8.00E-03	5.17E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient =9.62E-10
Y-axis intercept = 4.01E-02
relative error in fit =15.21 %

Dissolution Model

standard deviation=1.61E-02
average IFL=1.65E-02
variance= 97.77

Partition Model

Diffusion coefficient =9.98E-09
Partition Constant =0.50
relative error in fit = 3.63 %

Amostra G7-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.70E-02	3.70E-02
2	2.00	1.45E-02	5.15E-02
3	3.00	8.00E-03	5.95E-02
4	4.00	9.00E-03	6.85E-02
5	7.00	1.30E-02	8.15E-02
6	10.00	9.50E-03	9.10E-02
7	17.00	1.75E-02	1.08E-01
8	24.00	1.30E-02	1.21E-01
9	31.00	7.50E-03	1.29E-01
10	38.00	7.00E-03	1.36E-01
11	45.00	9.00E-03	1.45E-01
12	79.00	1.10E-02	1.56E-01
13	106.00	2.90E-02	1.85E-01
14	137.00	1.50E-02	2.00E-01
15	168.00	1.15E-02	2.11E-01
16	198.00	9.50E-03	2.21E-01
17	228.00	1.10E-02	2.32E-01
18	258.00	1.15E-02	2.43E-01
19	294.00	1.10E-02	2.54E-01
20	319.00	1.00E-02	2.64E-01
21	350.00	1.05E-02	2.75E-01
22	381.00	1.15E-02	2.86E-01
23	%1221	9.00E-02	3.76E-01
24	%1586	4.80E-02	4.24E-01
25	%2039	3.95E-02	4.64E-01
26	%2543	3.25E-02	4.96E-01
27	%2979	2.05E-02	5.17E-01
28	%3341	1.70E-02	5.34E-01
29	%3714	1.15E-02	5.45E-01
30	%4076	9.00E-03	5.54E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient =1.09E-09

Y-axis intercept = 3.98E-02

relative error in fit = 7.58 %

Dissolution Model

standard deviation=1.73E-02

average IFL=1.80E-02

variance= 96.41

Partition Model

Diffusion coefficient =7.04E-09

Partition Constant =0.56

relative error in fit = 2.37 %

Amostra G10-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	2.65E-02	2.65E-02
2	2.00	1.15E-02	3.80E-02
3	3.00	5.50E-03	4.35E-02
4	4.00	7.00E-03	5.05E-02
5	7.00	1.15E-02	6.20E-02
6	10.00	8.00E-03	7.00E-02
7	17.00	1.35E-02	8.35E-02
8	24.00	1.05E-02	9.40E-02
9	31.00	6.50E-03	1.00E-01
10	38.00	5.50E-03	1.06E-01
11	45.00	8.50E-03	1.14E-01
12	79.00	1.40E-02	1.28E-01
13	106.00	2.30E-02	1.52E-01
14	137.00	1.20E-02	1.63E-01
15	168.00	9.50E-03	1.73E-01
16	198.00	1.20E-02	1.85E-01
17	228.00	8.50E-03	1.93E-01
18	258.00	1.20E-02	2.05E-01
19	294.00	9.00E-03	2.14E-01
20	319.00	7.00E-03	2.21E-01
21	350.00	7.50E-03	2.29E-01
22	381.00	9.00E-03	2.38E-01
23	%1221	7.00E-02	3.08E-01
24	%1586	3.80E-02	3.46E-01
25	%2039	3.70E-02	3.83E-01
26	%2543	3.15E-02	4.14E-01
27	%2979	2.30E-02	4.37E-01
28	%3341	1.55E-02	4.53E-01
29	%3714	1.35E-02	4.66E-01
30	%4076	1.20E-02	4.78E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 7.17E-10
Y-axis intercept = 3.01E-02
relative error in fit = 7.78 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.38E-02
average IFL= 1.57E-02
variance= 87.96

Partition Model

Diffusion coefficient = 5.64E-09
Partition Constant = 0.50
relative error in fit = 2.85 %

Amostra G10-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	2.90E-02	2.90E-02
2	2.00	1.40E-02	4.30E-02
3	3.00	8.00E-03	5.10E-02
4	4.00	9.00E-03	6.00E-02
5	7.00	1.40E-02	7.40E-02
6	10.00	9.00E-03	8.30E-02
7	17.00	1.60E-02	9.90E-02
8	24.00	1.20E-02	1.11E-01
9	31.00	7.50E-03	1.19E-01
10	38.00	6.00E-03	1.25E-01
11	45.00	8.00E-03	1.33E-01
12	79.00	1.40E-02	1.47E-01
13	106.00	2.25E-02	1.69E-01
14	137.00	1.10E-02	1.80E-01
15	168.00	1.05E-02	1.90E-01
16	198.00	1.25E-02	2.03E-01
17	228.00	9.00E-03	2.12E-01
18	258.00	1.15E-02	2.23E-01
19	294.00	9.00E-03	2.33E-01
20	319.00	7.00E-03	2.40E-01
21	350.00	8.50E-03	2.48E-01
22	381.00	9.50E-03	2.57E-01
23	%1221	6.50E-02	3.22E-01
24	%1586	4.10E-02	3.63E-01
25	%2039	4.00E-02	4.03E-01
26	%2543	2.60E-02	4.29E-01
27	%2979	2.45E-02	4.54E-01
28	%3341	1.90E-02	4.73E-01
29	%3714	1.30E-02	4.86E-01
30	%4076	1.00E-02	4.96E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 7.96E-10
Y-axis intercept = 3.61E-02
relative error in fit = 10.87 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.31E-02
average IFL= 1.62E-02
variance= 81.18

Partition Model

Diffusion coefficient = 7.96E-10
Partition Constant = 1.00
relative error in fit = 10.87 %

Amostra G12-A - Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	1.55E-02	1.55E-02
2	2.00	5.00E-03	2.05E-02
3	3.00	4.00E-03	2.45E-02
4	4.00	5.00E-03	2.95E-02
5	7.00	8.50E-03	3.80E-02
6	10.00	7.00E-03	4.50E-02
7	16.00	2.65E-02	7.15E-02
8	24.00	2.90E-02	1.01E-01
9	31.00	1.15E-02	1.12E-01
10	38.00	9.00E-03	1.21E-01
11	45.00	1.45E-02	1.36E-01
12	78.00	2.00E-02	1.56E-01
13	107.00	1.10E-02	1.67E-01
14	126.00	7.00E-03	1.74E-01
15	157.00	7.00E-03	1.81E-01
16	186.00	9.50E-03	1.90E-01
17	217.00	1.20E-02	2.02E-01
18	248.00	8.00E-03	2.10E-01
19	280.00	9.00E-03	2.19E-01
20	311.00	5.50E-03	2.25E-01
21	343.00	5.00E-03	2.29E-01
22	374.00	8.00E-03	2.37E-01
23	%1172	6.00E-02	2.98E-01
24	%1537	3.00E-02	3.28E-01
25	%1990	2.65E-02	3.54E-01
26	%2495	2.45E-02	3.79E-01
27	%2930	1.45E-02	3.93E-01
28	%3292	1.15E-02	4.05E-01
29	%3665	9.00E-03	4.14E-01
30	%4027	8.50E-03	4.22E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 6.85E-10
Y-axis intercept = 9.57E-03
relative error in fit = 39.42 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.18E-02
average IFL= 1.43E-02
variance= 82.60

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.30E-08
Partition Constant = 0.40
relative error in fit = 5.71 %

Amostra G12-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	1.70E-02	1.70E-02
2	2.00	4.50E-03	2.15E-02
3	3.00	3.50E-03	2.50E-02
4	4.00	5.50E-03	3.05E-02
5	7.00	1.05E-02	4.10E-02
6	10.00	8.00E-03	4.90E-02
7	16.00	2.65E-02	7.55E-02
8	24.00	2.70E-02	1.02E-01
9	31.00	1.20E-02	1.15E-01
10	38.00	9.50E-03	1.24E-01
11	45.00	1.25E-02	1.37E-01
12	78.00	2.05E-02	1.57E-01
13	107.00	1.20E-02	1.69E-01
14	126.00	6.50E-03	1.76E-01
15	157.00	6.00E-03	1.82E-01
16	186.00	1.00E-02	1.92E-01
17	217.00	1.00E-02	2.02E-01
18	248.00	8.00E-03	2.10E-01
19	280.00	8.50E-03	2.18E-01
20	311.00	5.50E-03	2.24E-01
21	343.00	6.00E-03	2.30E-01
22	374.00	7.00E-03	2.37E-01
23	%1172	6.00E-02	2.97E-01
24	%1537	3.25E-02	3.29E-01
25	%1990	2.40E-02	3.53E-01
26	%2495	2.30E-02	3.76E-01
27	%2930	1.85E-02	3.95E-01
28	%3292	1.15E-02	4.06E-01
29	%3665	9.50E-03	4.16E-01
30	%4027	8.00E-03	4.24E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 6.80E-10

Y-axis intercept = 1.17E-02

relative error in fit = 38.17 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.18E-02

average IFL= 1.44E-02

variance= 82.10

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.31E-08

Partition Constant = 0.40

relative error in fit = 6.11 %

Amostra G15-A Cesio
Leaching data for C s

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	2.05E-02	2.05E-02
2	2.00	5.50E-03	2.60E-02
3	3.00	4.00E-03	3.00E-02
4	4.00	7.00E-03	3.70E-02
5	7.00	1.25E-02	4.95E-02
6	10.00	9.50E-03	5.90E-02
7	16.00	2.25E-02	8.15E-02
8	24.00	2.90E-02	1.11E-01
9	31.00	1.60E-02	1.26E-01
10	38.00	1.30E-02	1.39E-01
11	45.00	1.50E-02	1.54E-01
12	78.00	2.75E-02	1.82E-01
13	107.00	1.55E-02	1.97E-01
14	126.00	1.05E-02	2.08E-01
15	157.00	1.00E-02	2.18E-01
16	186.00	1.20E-02	2.30E-01
17	217.00	1.50E-02	2.45E-01
18	248.00	9.50E-03	2.55E-01
19	280.00	1.10E-02	2.66E-01
20	311.00	7.00E-03	2.73E-01
21	343.00	6.50E-03	2.79E-01
22	374.00	8.50E-03	2.88E-01
23	%1172	5.50E-02	3.43E-01
24	%1537	3.40E-02	3.77E-01
25	%1990	2.85E-02	4.05E-01
26	%2495	2.15E-02	4.27E-01
27	%2930	1.70E-02	4.44E-01
28	%3292	1.40E-02	4.58E-01
29	%3665	9.00E-03	4.67E-01
30	%4027	5.00E-03	4.72E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.03E-09

Y-axis intercept = -0.87E-03

relative error in fit = 59.34 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.09E-02

average IFL= 1.59E-02

variance= 68.61

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.74E-08

Partition Constant = 0.44

relative error in fit = 5.37 %

Amostra G15- B Cesio
Leaching data for C s

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	2.20E-02	2.20E-02
2	2.00	6.50E-03	2.85E-02
3	3.00	5.00E-03	3.35E-02
4	4.00	7.00E-03	4.05E-02
5	7.00	1.20E-02	5.25E-02
6	10.00	9.50E-03	6.20E-02
7	16.00	2.35E-02	8.55E-02
8	24.00	2.85E-02	1.14E-01
9	31.00	1.50E-02	1.29E-01
10	38.00	1.35E-02	1.42E-01
11	45.00	1.50E-02	1.57E-01
12	78.00	2.75E-02	1.85E-01
13	107.00	1.50E-02	2.00E-01
14	126.00	1.00E-02	2.10E-01
15	157.00	1.00E-02	2.20E-01
16	186.00	1.25E-02	2.33E-01
17	217.00	1.50E-02	2.48E-01
18	248.00	9.50E-03	2.57E-01
19	280.00	1.10E-02	2.68E-01
20	311.00	7.00E-03	2.75E-01
21	343.00	6.50E-03	2.82E-01
22	374.00	9.00E-03	2.91E-01
23	%1172	6.50E-02	3.56E-01
24	%1537	3.35E-02	3.89E-01
25	%1990	2.60E-02	4.15E-01
26	%2495	2.00E-02	4.35E-01
27	%2930	1.60E-02	4.51E-01
28	%3292	1.30E-02	4.64E-01
29	%3665	9.00E-03	4.73E-01
30	%4027	7.50E-03	4.81E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.09E-09
Y-axis intercept = -0.36E-02
relative error in fit = 60.13 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.21E-02
average IFL= 1.61E-02
variance= 74.83

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.73E-08
Partition Constant = 0.45
relative error in fit = 4.88 %

Amostra F7-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.10E-02	3.10E-02
2	2.00	1.40E-02	4.50E-02
3	3.00	8.50E-03	5.35E-02
4	4.00	1.00E-02	6.35E-02
5	7.00	1.50E-02	7.85E-02
6	10.00	1.05E-02	8.90E-02
7	17.00	1.75E-02	1.06E-01
8	24.00	1.25E-02	1.19E-01
9	31.00	8.00E-03	1.27E-01
10	38.00	7.00E-03	1.34E-01
11	45.00	9.50E-03	1.44E-01
12	79.00	1.00E-02	1.54E-01
13	106.00	2.90E-02	1.83E-01
14	137.00	2.05E-02	2.03E-01
15	168.00	1.25E-02	2.16E-01
16	198.00	1.15E-02	2.27E-01
17	228.00	1.20E-02	2.39E-01
18	259.00	1.30E-02	2.52E-01
19	294.00	1.30E-02	2.65E-01
20	319.00	1.05E-02	2.76E-01
21	350.00	1.10E-02	2.87E-01
22	381.00	1.20E-02	2.99E-01
23	%1221	1.15E-01	4.14E-01
24	%1586	5.45E-02	4.68E-01
25	%2038	4.55E-02	5.13E-01
26	%2545	3.90E-02	5.52E-01
27	%2979	1.90E-02	5.71E-01
28	%3341	2.10E-02	5.92E-01
29	%3714	1.40E-02	6.06E-01
30	%4076	1.05E-02	6.17E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.44E-09
Y-axis intercept = 3.26E-02
relative error in fit = 3.90 %

Dissolution Model

standard deviation= 2.18E-02
average IFL= 2.04E-02
variance= 106.96

Partition Model

Diffusion coefficient = 5.19E-09
Partition Constant = 0.66
relative error in fit = 1.16 %

Amostra F7-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	2.65E-02	2.65E-02
2	2.00	1.20E-02	3.85E-02
3	3.00	7.00E-03	4.55E-02
4	4.00	9.00E-03	5.45E-02
5	7.00	1.45E-02	6.90E-02
6	10.00	1.10E-02	8.00E-02
7	17.00	1.60E-02	9.60E-02
8	24.00	1.25E-02	1.09E-01
9	31.00	7.00E-03	1.16E-01
10	38.00	6.50E-03	1.22E-01
11	45.00	9.00E-03	1.31E-01
12	79.00	1.15E-02	1.42E-01
13	106.00	2.60E-02	1.68E-01
14	137.00	1.95E-02	1.88E-01
15	168.00	1.20E-02	2.00E-01
16	198.00	9.50E-03	2.09E-01
17	228.00	1.05E-02	2.20E-01
18	258.00	1.20E-02	2.32E-01
19	294.00	1.15E-02	2.43E-01
20	319.00	8.50E-03	2.52E-01
21	350.00	1.00E-02	2.62E-01
22	381.00	1.10E-02	2.73E-01
23	%1221	1.00E-01	3.73E-01
24	%1586	4.85E-02	4.21E-01
25	%2038	4.10E-02	4.62E-01
26	%2545	3.30E-02	4.95E-01
27	%2979	1.90E-02	5.14E-01
28	%3341	1.70E-02	5.31E-01
29	%3714	1.40E-02	5.45E-01
30	%4076	8.00E-03	5.53E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.09E-09

Y-axis intercept = 2.91E-02

relative error in fit = 6.13 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.90E-02

average IFL= 1.84E-02

variance= 103.10

Partition Model

Diffusion coefficient = 5.19E-09

Partition Constant = 0.60

relative error in fit = 1.57 %

Amostra F10-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.15E-02	3.15E-02
2	2.00	1.55E-02	4.70E-02
3	3.00	8.50E-03	5.55E-02
4	4.00	1.10E-02	6.65E-02
5	7.00	1.65E-02	8.30E-02
6	10.00	1.15E-02	9.45E-02
7	17.00	2.00E-02	1.14E-01
8	24.00	1.55E-02	1.30E-01
9	31.00	9.50E-03	1.39E-01
10	38.00	7.50E-03	1.47E-01
11	45.00	1.05E-02	1.57E-01
12	79.00	1.50E-02	1.72E-01
13	106.00	2.95E-02	2.02E-01
14	137.00	2.20E-02	2.24E-01
15	168.00	1.35E-02	2.37E-01
16	198.00	1.10E-02	2.48E-01
17	228.00	1.20E-02	2.60E-01
18	258.00	1.25E-02	2.73E-01
19	294.00	1.20E-02	2.85E-01
20	319.00	1.00E-02	2.95E-01
21	350.00	9.50E-03	3.04E-01
22	381.00	1.00E-02	3.14E-01
23	%1221	7.00E-02	3.84E-01
24	%1586	5.00E-02	4.34E-01
25	%2038	1.75E-02	4.52E-01
26	%2545	2.35E-02	4.75E-01
27	%2979	8.00E-03	4.83E-01
28	%3341	1.40E-02	4.97E-01
29	%3714	1.20E-02	5.09E-01
30	%4076	5.00E-03	5.14E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.11E-09

Y-axis intercept = 2.83E-02

relative error in fit = 33.20 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.36E-02

average IFL= 1.67E-02

variance= 81.45

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.33E-08

Partition Constant = 0.50

relative error in fit = 3.43 %

Amostra F10-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.15E-02	3.15E-02
2	2.00	1.55E-02	4.70E-02
3	3.00	8.50E-03	5.55E-02
4	4.00	1.10E-02	6.65E-02
5	7.00	1.65E-02	8.30E-02
6	10.00	1.15E-02	9.45E-02
7	17.00	2.00E-02	1.14E-01
8	24.00	1.55E-02	1.30E-01
9	31.00	9.50E-03	1.39E-01
10	38.00	7.50E-03	1.47E-01
11	45.00	1.05E-02	1.57E-01
12	79.00	1.50E-02	1.72E-01
13	106.00	2.95E-02	2.02E-01
14	137.00	2.20E-02	2.24E-01
15	168.00	1.35E-02	2.37E-01
16	198.00	1.10E-02	2.48E-01
17	228.00	1.20E-02	2.60E-01
18	259.00	1.25E-02	2.73E-01
19	294.00	1.20E-02	2.85E-01
20	319.00	1.00E-02	2.95E-01
21	350.00	9.50E-03	3.04E-01
22	381.00	1.00E-02	3.14E-01
23	%1221	7.00E-02	3.84E-01
24	%1586	5.00E-02	4.34E-01
25	%2038	1.75E-02	4.52E-01
26	%2545	2.35E-02	4.75E-01
27	%2979	8.00E-03	4.83E-01
28	%3341	1.40E-02	4.97E-01
29	%3714	1.20E-02	5.09E-01
30	%4076	5.00E-03	5.14E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.11E-09

Y-axis intercept = 2.83E-02

relative error in fit = 33.18 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.36E-02

average IFL= 1.67E-02

variance= 81.45

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.33E-08

Partition Constant = 0.50

relative error in fit = 3.43 %

Amostra F10-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.25E-02	3.25E-02
2	2.00	1.35E-02	4.60E-02
3	3.00	4.50E-03	5.05E-02
4	4.00	9.00E-03	5.95E-02
5	7.00	1.45E-02	7.40E-02
6	10.00	9.50E-03	8.35E-02
7	17.00	1.75E-02	1.01E-01
8	24.00	1.35E-02	1.15E-01
9	31.00	9.00E-03	1.24E-01
10	38.00	7.00E-03	1.31E-01
11	45.00	9.50E-03	1.40E-01
12	79.00	1.50E-02	1.55E-01
13	106.00	2.80E-02	1.83E-01
14	137.00	1.65E-02	1.99E-01
15	168.00	1.20E-02	2.11E-01
16	198.00	9.00E-03	2.20E-01
17	228.00	1.10E-02	2.31E-01
18	259.00	1.20E-02	2.43E-01
19	294.00	1.20E-02	2.55E-01
20	319.00	9.00E-03	2.64E-01
21	350.00	6.50E-03	2.71E-01
22	381.00	7.50E-03	2.78E-01
23	%1221	9.50E-02	3.73E-01
24	%1586	4.55E-02	4.19E-01
25	%2038	3.00E-02	4.49E-01
26	%2545	3.40E-02	4.83E-01
27	%2979	2.25E-02	5.06E-01
28	%3341	2.10E-02	5.27E-01
29	%3714	1.55E-02	5.42E-01
30	%4076	9.00E-03	5.51E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.11E-09

Y-axis intercept = 3.11E-02

relative error in fit = 9.81 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.78E-02

average IFL= 1.80E-02

variance= 98.48

Partition Model

Diffusion coefficient = 7.40E-09

Partition Constant = 0.55

relative error in fit = 2.55 %

Amostra N7-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	4.35E-02	4.35E-02
2	2.00	2.00E-02	6.35E-02
3	3.00	1.40E-02	7.75E-02
4	4.00	9.50E-03	8.70E-02
5	7.00	1.90E-02	1.06E-01
6	10.00	1.60E-02	1.22E-01
7	17.00	2.60E-02	1.48E-01
8	24.00	1.90E-02	1.67E-01
9	30.00	1.25E-02	1.79E-01
10	38.00	1.30E-02	1.92E-01
11	45.00	7.50E-03	2.00E-01
12	81.00	3.40E-02	2.34E-01
13	112.00	2.25E-02	2.56E-01
14	142.00	2.65E-02	2.83E-01
15	172.00	2.75E-02	3.10E-01
16	203.00	1.70E-02	3.27E-01
17	234.00	2.25E-02	3.50E-01
18	266.00	1.25E-02	3.62E-01
19	297.00	1.70E-02	3.79E-01
20	329.00	1.35E-02	3.93E-01
21	364.00	2.10E-02	4.14E-01
22	392.00	6.50E-03	4.20E-01
23	%1123	1.30E-01	5.50E-01
24	%1488	4.30E-02	5.93E-01
25	%1940	6.00E-02	6.53E-01
26	%2446	5.50E-02	7.08E-01
27	%2881	2.45E-02	7.33E-01
28	%3243	2.10E-02	7.54E-01
29	%3616	5.00E-03	7.59E-01
30	%3978	1.20E-02	7.71E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 3.42E-09

Y-axis intercept = 2.95E-02

relative error in fit = 7.54 %

Dissolution Model

standard deviation= 2.44E-02

average IFL= 2.53E-02

variance= 96.51

Partition Model

Diffusion coefficient = 8.77E-09

Partition Constant = 0.77

relative error in fit = 1.94 %

Amostra N7-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	4.52E-02	4.52E-02
2	2.00	2.11E-02	6.62E-02
3	3.00	1.56E-02	8.18E-02
4	4.00	9.53E-03	9.13E-02
5	7.00	2.01E-02	1.11E-01
6	10.00	1.81E-02	1.29E-01
7	17.00	2.76E-02	1.57E-01
8	24.00	2.01E-02	1.77E-01
9	30.00	1.30E-02	1.90E-01
10	38.00	1.30E-02	2.03E-01
11	45.00	7.53E-03	2.11E-01
12	81.00	3.71E-02	2.48E-01
13	112.00	2.21E-02	2.70E-01
14	142.00	2.51E-02	2.95E-01
15	172.00	2.76E-02	3.23E-01
16	203.00	1.51E-02	3.38E-01
17	234.00	2.21E-02	3.60E-01
18	266.00	1.25E-02	3.72E-01
19	297.00	1.61E-02	3.88E-01
20	329.00	1.35E-02	4.02E-01
21	364.00	2.01E-02	4.22E-01
22	392.00	6.02E-03	4.28E-01
23	%1123	1.25E-01	5.53E-01
24	%1488	4.92E-02	6.03E-01
25	%1940	4.97E-02	6.52E-01
26	%2446	4.52E-02	6.97E-01
27	%2881	2.21E-02	7.19E-01
28	%3243	2.31E-02	7.42E-01
29	%3616	1.35E-02	7.56E-01
30	%3978	1.20E-02	7.68E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 3.53E-09

Y-axis intercept = 2.39E-02

relative error in fit = 12.24 %

Dissolution Model

standard deviation= 2.28E-02

average IFL= 2.51E-02

variance= 90.97

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.08E-08

Partition Constant = 0.74

relative error in fit = 2.92 %

Amostra N10-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	4.65E-02	4.65E-02
2	2.00	2.00E-02	6.65E-02
3	3.00	1.40E-02	8.05E-02
4	4.00	9.50E-03	9.00E-02
5	7.00	1.85E-02	1.08E-01
6	10.00	1.65E-02	1.25E-01
7	17.00	2.60E-02	1.51E-01
8	24.00	2.00E-02	1.71E-01
9	30.00	1.30E-02	1.84E-01
10	38.00	1.35E-02	1.97E-01
11	45.00	8.50E-03	2.06E-01
12	81.00	3.90E-02	2.45E-01
13	112.00	2.20E-02	2.67E-01
14	142.00	2.60E-02	2.93E-01
15	172.00	2.75E-02	3.20E-01
16	203.00	1.65E-02	3.37E-01
17	234.00	2.00E-02	3.57E-01
18	266.00	1.15E-02	3.68E-01
19	297.00	1.35E-02	3.82E-01
20	329.00	1.05E-02	3.92E-01
21	364.00	1.70E-02	4.09E-01
22	392.00	9.50E-03	4.19E-01
23	%1123	9.50E-02	5.14E-01
24	%1488	5.50E-02	5.69E-01
25	%1940	5.00E-02	6.19E-01
26	%2446	4.40E-02	6.63E-01
27	%2881	2.20E-02	6.85E-01
28	%3243	2.25E-02	7.07E-01
29	%3616	1.20E-02	7.19E-01
30	%3978	1.20E-02	7.31E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 3.02E-09
Y-axis intercept = 2.87E-02
relative error in fit = 15.83 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.85E-02
average IFL= 2.37E-02
variance= 78.08

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.16E-08
Partition Constant = 0.70
relative error in fit = 3.50 %

Amostras N12-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	5.54E-02	5.54E-02
2	2.00	3.21E-02	8.75E-02
3	3.00	1.83E-02	1.06E-01
4	4.00	1.16E-02	1.17E-01
5	5.00	7.75E-03	1.25E-01
6	7.00	1.38E-02	1.39E-01
7	11.00	2.21E-02	1.61E-01
8	16.00	3.04E-02	1.92E-01
9	23.00	3.32E-02	2.25E-01
10	30.00	9.41E-03	2.34E-01
11	37.00	1.27E-02	2.47E-01
12	67.00	3.60E-02	2.83E-01
13	98.00	2.16E-02	3.04E-01
14	129.00	1.33E-02	3.18E-01
15	161.00	2.10E-02	3.39E-01
16	196.00	1.27E-02	3.51E-01
17	224.00	9.96E-03	3.61E-01
18	255.00	1.16E-02	3.73E-01
19	287.00	9.41E-03	3.82E-01
20	318.00	9.96E-03	3.92E-01
21	357.00	9.41E-03	4.02E-01
22	380.00	7.75E-03	4.10E-01
23	976.00	4.21E-02	4.52E-01
24	%1341	4.37E-02	4.95E-01
25	%1793	4.21E-02	5.37E-01
26	%2299	3.38E-02	5.71E-01
27	%2734	2.21E-02	5.93E-01
28	%3096	1.77E-02	6.11E-01
29	%3469	1.33E-02	6.24E-01
30	%3831	1.16E-02	6.36E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 2.45E-09
Y-axis intercept = 2.64E-02
relative error in fit = 62.15 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.15E-02
average IFL= 1.96E-02
variance= 58.65

Partition Model

Diffusion coefficient = 2.69E-08
Partition Constant = 0.57
relative error in fit = 13.54 %

Amostras N12-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	5.43E-02	5.43E-02
2	2.00	3.21E-02	8.64E-02
3	3.00	1.85E-02	1.05E-01
4	4.00	1.14E-02	1.16E-01
5	5.00	7.61E-03	1.24E-01
6	7.00	1.36E-02	1.38E-01
7	11.00	2.17E-02	1.59E-01
8	16.00	2.72E-02	1.86E-01
9	23.00	3.26E-02	2.19E-01
10	30.00	9.78E-03	2.29E-01
11	37.00	1.25E-02	2.41E-01
12	67.00	3.70E-02	2.78E-01
13	98.00	2.17E-02	3.00E-01
14	129.00	1.30E-02	3.13E-01
15	161.00	1.41E-02	3.27E-01
16	196.00	1.25E-02	3.40E-01
17	224.00	8.15E-03	3.48E-01
18	255.00	1.30E-02	3.61E-01
19	287.00	9.78E-03	3.71E-01
20	318.00	7.07E-03	3.78E-01
21	357.00	7.07E-03	3.85E-01
22	380.00	7.07E-03	3.92E-01
23	976.00	5.43E-02	4.46E-01
24	%1341	5.05E-02	4.97E-01
25	%1793	3.80E-02	5.35E-01
26	%2299	3.70E-02	5.72E-01
27	%2734	2.17E-02	5.93E-01
28	%3096	1.74E-02	6.11E-01
29	%3469	1.25E-02	6.23E-01
30	%3831	1.25E-02	6.36E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 2.36E-09

Y-axis intercept = 2.74E-02

relative error in fit = 54.60 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.32E-02

average IFL= 1.96E-02

variance= 67.33

Partition Model

Diffusion coefficient = 2.28E-08

Partition Constant = 0.58

relative error in fit = 13.98 %

Amostra B7-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	5.17E-02	5.17E-02
2	2.00	2.90E-02	8.07E-02
3	3.00	1.76E-02	9.83E-02
4	4.00	1.14E-02	1.10E-01
5	5.00	7.24E-03	1.17E-01
6	7.00	1.40E-02	1.31E-01
7	11.00	2.17E-02	1.53E-01
8	16.00	2.84E-02	1.81E-01
9	23.00	2.84E-02	2.09E-01
10	30.00	8.79E-03	2.18E-01
11	37.00	1.14E-02	2.30E-01
12	67.00	3.62E-02	2.66E-01
13	98.00	2.74E-02	2.93E-01
14	129.00	1.76E-02	3.11E-01
15	161.00	2.12E-02	3.32E-01
16	196.00	2.12E-02	3.53E-01
17	224.00	1.97E-02	3.73E-01
18	255.00	1.03E-02	3.83E-01
19	287.00	1.24E-02	3.96E-01
20	318.00	1.24E-02	4.08E-01
21	357.00	1.50E-02	4.23E-01
22	380.00	1.24E-02	4.36E-01
23	976.00	9.31E-02	5.29E-01
24	%1341	6.21E-02	5.91E-01
25	%1793	4.34E-02	6.34E-01
26	%2300	4.66E-02	6.81E-01
27	%2734	1.55E-02	6.96E-01
28	%3096	2.12E-02	7.17E-01
29	%3469	1.50E-02	7.32E-01
30	%3831	1.19E-02	7.44E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 3.61E-09

Y-axis intercept = 2.28E-02

relative error in fit = 23.48 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.86E-02

average IFL= 2.37E-02

variance= 78.47

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.41E-08

Partition Constant = 0.71

relative error in fit = 6.40 %

Amostra B7-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	5.02E-02	5.02E-02
2	2.00	3.06E-02	8.08E-02
3	3.00	1.71E-02	9.78E-02
4	4.00	1.15E-02	1.09E-01
5	5.00	7.02E-03	1.16E-01
6	7.00	1.45E-02	1.31E-01
7	11.00	2.16E-02	1.53E-01
8	16.00	2.51E-02	1.78E-01
9	23.00	2.76E-02	2.05E-01
10	30.00	9.03E-03	2.14E-01
11	37.00	1.10E-02	2.25E-01
12	67.00	3.61E-02	2.61E-01
13	98.00	2.36E-02	2.85E-01
14	129.00	1.86E-02	3.04E-01
15	161.00	1.30E-02	3.17E-01
16	196.00	1.91E-02	3.36E-01
17	224.00	1.91E-02	3.55E-01
18	255.00	9.53E-03	3.64E-01
19	287.00	1.30E-02	3.77E-01
20	318.00	1.05E-02	3.88E-01
21	357.00	1.45E-02	4.02E-01
22	380.00	1.15E-02	4.14E-01
23	976.00	9.03E-02	5.04E-01
24	%1341	6.02E-02	5.64E-01
25	%1793	3.76E-02	6.02E-01
26	%2300	1.91E-02	6.21E-01
27	%2734	2.21E-02	6.43E-01
28	%3096	1.96E-02	6.63E-01
29	%3469	1.15E-02	6.74E-01
30	%3831	1.15E-02	6.86E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 2.99E-09

Y-axis intercept = 2.32E-02

relative error in fit = 33.53 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.74E-02

average IFL= 2.16E-02

variance= 80.57

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.66E-08

Partition Constant = 0.65

relative error in fit = 7.35 %

Amostra B10-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.70E-02	3.70E-02
2	2.00	1.25E-02	4.95E-02
3	3.00	1.15E-02	6.10E-02
4	4.00	7.00E-03	6.80E-02
5	5.00	6.00E-03	7.40E-02
6	7.00	1.35E-02	8.75E-02
7	9.00	8.50E-03	9.60E-02
8	17.00	2.60E-02	1.22E-01
9	24.00	1.35E-02	1.36E-01
10	31.00	1.05E-02	1.46E-01
11	38.00	1.40E-02	1.60E-01
12	45.00	1.10E-02	1.71E-01
13	77.00	3.60E-02	2.07E-01
14	107.00	2.70E-02	2.34E-01
15	137.00	2.45E-02	2.59E-01
16	175.00	2.05E-02	2.79E-01
17	199.00	1.70E-02	2.96E-01
18	231.00	1.45E-02	3.10E-01
19	262.00	1.50E-02	3.26E-01
20	294.00	1.40E-02	3.40E-01
21	325.00	1.55E-02	3.55E-01
22	357.00	1.35E-02	3.69E-01
23	%1102	9.50E-02	4.64E-01
24	%1467	4.05E-02	5.04E-01
25	%1919	3.50E-02	5.39E-01
26	%2426	3.20E-02	5.71E-01
27	%2860	1.95E-02	5.91E-01
28	%3222	1.35E-02	6.04E-01
29	%3595	1.10E-02	6.15E-01
30	%3957	5.00E-03	6.20E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.95E-09

Y-axis intercept = 2.16E-02

relative error in fit = 23.66 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.74E-02

average IFL= 2.04E-02

variance= 85.24

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.28E-08

Partition Constant = 0.60

relative error in fit = 2.03 %

Amostra B10-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.60E-02	3.60E-02
2	2.00	1.30E-02	4.90E-02
3	3.00	1.20E-02	6.10E-02
4	4.00	8.50E-03	6.95E-02
5	5.00	6.00E-03	7.55E-02
6	7.00	1.35E-02	8.90E-02
7	9.00	8.50E-03	9.75E-02
8	17.00	2.50E-02	1.23E-01
9	24.00	1.30E-02	1.35E-01
10	31.00	1.05E-02	1.46E-01
11	38.00	1.25E-02	1.59E-01
12	45.00	1.05E-02	1.69E-01
13	77.00	3.35E-02	2.03E-01
14	107.00	2.65E-02	2.29E-01
15	137.00	2.40E-02	2.53E-01
16	175.00	1.95E-02	2.72E-01
17	199.00	1.60E-02	2.88E-01
18	231.00	1.40E-02	3.02E-01
19	262.00	1.45E-02	3.17E-01
20	294.00	1.30E-02	3.30E-01
21	325.00	1.50E-02	3.45E-01
22	357.00	1.25E-02	3.57E-01
23	%1102	8.50E-02	4.42E-01
24	%1467	3.30E-02	4.75E-01
25	%1919	3.75E-02	5.13E-01
26	%2426	3.10E-02	5.44E-01
27	%2860	1.45E-02	5.58E-01
28	%3222	1.05E-02	5.69E-01
29	%3595	7.50E-03	5.76E-01
30	%3957	9.00E-03	5.86E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.70E-09

Y-axis intercept = 2.28E-02

relative error in fit = 29.85 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.56E-02

average IFL= 1.92E-02

variance= 81.16

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.46E-08

Partition Constant = 0.56

relative error in fit = 2.44 %

Amostra B12-A Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	3.65E-02	3.65E-02
2	2.00	1.30E-02	4.95E-02
3	3.00	1.25E-02	6.20E-02
4	4.00	8.50E-03	7.05E-02
5	5.00	6.00E-03	7.65E-02
6	7.00	1.35E-02	9.00E-02
7	9.00	9.00E-03	9.90E-02
8	17.00	2.55E-02	1.25E-01
9	24.00	1.35E-02	1.38E-01
10	31.00	1.15E-02	1.50E-01
11	38.00	1.35E-02	1.63E-01
12	45.00	1.15E-02	1.75E-01
13	77.00	3.85E-02	2.13E-01
14	107.00	2.65E-02	2.40E-01
15	137.00	2.50E-02	2.65E-01
16	175.00	2.05E-02	2.85E-01
17	199.00	1.65E-02	3.02E-01
18	231.00	1.45E-02	3.16E-01
19	262.00	1.45E-02	3.31E-01
20	294.00	1.40E-02	3.45E-01
21	325.00	1.50E-02	3.59E-01
22	357.00	1.30E-02	3.73E-01
23	%1102	8.00E-02	4.53E-01
24	%1467	4.05E-02	4.93E-01
25	%1919	3.55E-02	5.29E-01
26	%2426	2.10E-02	5.50E-01
27	%2860	2.05E-02	5.70E-01
28	%3222	1.30E-02	5.83E-01
29	%3595	9.00E-03	5.92E-01
30	%3957	7.00E-03	5.99E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.86E-09
Y-axis intercept = 2.21E-02
relative error in fit = 32.41 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.49E-02
average IFL= 1.96E-02
variance= 75.94

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.56E-08
Partition Constant = 0.57
relative error in fit = 2.44 %

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL
SEÇÃO CIRCULANTE

Amostra B12-B Cesio
Leaching data for Cs

#	Time(d)	IFL	CFL
1	1.00	0.00E+00	0.00E+00
2	2.00	1.35E-02	1.35E-02
3	3.00	1.30E-02	2.65E-02
4	4.00	8.50E-03	3.50E-02
5	5.00	5.50E-03	4.05E-02
6	7.00	1.30E-02	5.35E-02
7	9.00	9.50E-03	6.30E-02
8	24.00	2.55E-02	8.85E-02
9	31.00	1.40E-02	1.02E-01
10	38.00	1.40E-02	1.16E-01
11	45.00	1.15E-02	1.28E-01
12	77.00	3.80E-02	1.66E-01
13	107.00	2.90E-02	1.95E-01
14	137.00	2.55E-02	2.20E-01
15	175.00	2.00E-02	2.40E-01
16	199.00	1.65E-02	2.57E-01
17	231.00	1.45E-02	2.71E-01
18	262.00	1.40E-02	2.85E-01
19	294.00	1.35E-02	2.99E-01
20	325.00	1.45E-02	3.13E-01
21	357.00	1.25E-02	3.26E-01
22	%1102	8.00E-02	4.06E-01
23	%1467	3.65E-02	4.42E-01
24	%1919	3.10E-02	4.73E-01
25	%2426	2.80E-02	5.02E-01
26	%2860	1.45E-02	5.16E-01
27	%3222	1.35E-02	5.30E-01
28	%3595	1.00E-02	5.39E-01
29	%3957	8.00E-03	5.48E-01

Diffusion Model

Diffusion coefficient = 1.49E-09
Y-axis intercept = -0.74E-02
relative error in fit = 33.97 %

Dissolution Model

standard deviation= 1.49E-02
average IFL= 1.98E-02
variance= 75.13

Partition Model

Diffusion coefficient = 1.25E-08
Partition Constant = 0.53
relative error in fit = 1.96 %